

GASEMISSION UND OBERFLÄCHENVERÄNDERUNG BEI IMPLANTATION  
VON HELIUM IN NICKEL

Joachim Klaus Ehrenberg

1982



GASEMISSION UND OBERFLÄCHENVERÄNDERUNG BEI IMPLANTATION  
VON HELIUM IN NICKEL

Dissertation  
der Fakultät für Physik der  
Ludwig-Maximilian-Universität München

vorgelegt von Joachim Klaus Ehrenberg  
aus Ellwangen

München, den 18. Dezember 1981

1. Gutachter: Professor Dr. R. Sizmann

2. Gutachter: Professor Dr. H. Peisl

Tag der mündlichen Prüfung: 25. Februar 1982



## Zusammenfassung

Es werden simultane Messungen der Heliumreemission und Oberflächenveränderung von poly- und einkristallinem Nickel während der Implantation von Heliumionen mit Energien zwischen 20 keV und 150 keV (Schwerpunkt bei 40 keV) und bei Beschußtemperaturen von 25<sup>0</sup> C bis 950<sup>0</sup> C durchgeführt. Die auf die Proben geschossenen Heliumfluenzen ( $\text{He}^+/\text{cm}^2$ ) betragen dabei zwischen  $5 \times 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  und  $1,6 \times 10^{19} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ . Zusätzlich werden mit Hilfe der Kernreaktionsmethode  $^3\text{He}(\text{d},\alpha)\text{H}$  die Tiefenprofile des implantierten Heliums gemessen.

Die Bindungsverhältnisse des Heliums in Nickel werden durch isochrone Temperung der Proben bis ca. 1000<sup>0</sup> C nach der Implantation und Messung der Desorptionsspektren studiert.

Mit einem Lichtmikroskop und einem Rasterelektronenmikroskop werden die Oberflächen beschossener Proben beobachtet. Außerdem wird bei einem Experiment mit Hilfe eines Transmissionselektronenmikroskopes die Veränderung in der beschossenen Schicht bei Erwärmung untersucht.

Bei allen Implantationsenergien und Beschußtemperaturen beginnt bei einer temperatur- und energieabhängigen kritischen Fluenz gleichzeitig mit der Oberflächenveränderung verstärkte Heliumreemission. Bei Zimmertemperaturbeschuß mit 40 keV beträgt die mittlere kritische Fluenz  $5,2 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ . Dabei erhält man bei der häufigsten projizierten Reichweite der Heliumionen in Nickel eine maximale Heliumkonzentration von 40 %, die bei weiterem Beschuß auf 30 % absinkt. Bei Sättigung der Probe ist über die gesamte Implantationstiefe eine gleichmäßige Konzentration von 30 % aufgebaut.

Aus dem Vergleich der experimentellen Reemissionsratenspektren mit dem aus einem Aufsammodell (Doyle et al. 1980) berechneten, sowie der Analyse der Reemissionsrate im Zusammenhang mit der Blisterbildung, ergibt sich, daß die Blisterbildung zwar Wege für die Heliumreemission öffnet, jedoch nicht allein die Heliumreemission verursacht. Eine qualitative Erklärung des gemessenen Zusammenhangs zwischen Reemissionsrate und Blisterbildungsrate kann auf der Grundlage des lateralen Spannungsmodells für die Blisterbildung gegeben werden. Die Anwendung des Gasdruckmodells führt zu Widersprüchen.

Die thermischen Desorptionsspektren implantierter Proben unterscheiden sich nicht sehr, wenn mit verschiedenen Energien der Heliumionen geschossen wird. Sie hängen jedoch von der Beschußtemperatur und der Fluenz ab.

Nach Zimmertemperaturbeschuß mit einer Heliumenergie von 40 keV beobachtet man, daß bis zur kritischen Fluenz mit steigenden Fluenzen Helium bei niedrigeren Temperaturen desorbiert. Ab der kritischen Fluenz erhält man bei 150° C ein zusätzliches Desorptionsmaximum und keine weitere Verschiebung der Temperatur bei der die Desorption beginnt. Die Erwärmung der Probe führt zum Wachstum von Heliumblasen.

Das Desorptionsmaximum bei 150° C kann durch einen Ein-Sprung-bestimmten Desorptionsprozeß mit einer Gaußverteilung von Aktivierungsenergien um 1 eV theoretisch angenähert werden.

Bei höheren Desorptionstemperaturen (> 300° C) findet man Hinweise dafür, daß Helium durch das Öffnen von Heliumblasen an der Probenoberfläche sowie durch Ein-Sprung-bestimmte Prozesse freigesetzt wird.

## Inhaltsverzeichnis

|         |                                                                                                      |    |
|---------|------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| I.      | EINLEITUNG . . . . .                                                                                 | 1  |
| I.1     | Bedeutung . . . . .                                                                                  | 1  |
| I.2     | Aufgabenstellung . . . . .                                                                           | 4  |
| I.3     | Obersicht . . . . .                                                                                  | 5  |
| II.     | EINSCHUSS VON LEICHTEN IONEN IN METALLE . . . . .                                                    | 6  |
| II.1    | Energieverlust . . . . .                                                                             | 6  |
| II.2    | Reichweiten . . . . .                                                                                | 9  |
| II.3    | Strahlenschäden . . . . .                                                                            | 11 |
| II.4    | Aufsammeln von implantiertem Helium . . . . .                                                        | 15 |
| II.5    | Blisterbildung . . . . .                                                                             | 21 |
| II.6    | Reemission während der Implantation und Diffusion<br>von Helium in Metallen . . . . .                | 31 |
| III.    | EXPERIMENTELLE METHODEN . . . . .                                                                    | 36 |
| III.1   | Heliumpartialdruckmessungen . . . . .                                                                | 36 |
| III.1.1 | Messung des Gasreemissionskoeffizienten . . . . .                                                    | 37 |
| III.1.2 | Messung der thermischen Gasdesorption . . . . .                                                      | 39 |
| III.2   | Messung der Oberflächenveränderung der Probe . . . . .                                               | 43 |
| III.3   | Messung der Heliumtiefenprofile . . . . .                                                            | 45 |
| III.4   | Mikroskopische Oberflächenuntersuchungen . . . . .                                                   | 49 |
| IV.     | EXPERIMENTELLE APPARATUR UND DURCHFÜHRUNG DER MESSUNGEN . . . . .                                    | 50 |
| IV.1    | Apparatur . . . . .                                                                                  | 51 |
| IV.2    | Nachweiselektronik . . . . .                                                                         | 55 |
| IV.3    | Probenpräparation . . . . .                                                                          | 57 |
| IV.4    | Versuchsdurchführung . . . . .                                                                       | 58 |
| IV.5    | Betrachtung der Unsicherheiten der Messungen . . . . .                                               | 60 |
| V.      | MESSERGEBNISSE . . . . .                                                                             | 67 |
| V.1     | Gasreemissionsrate und Oberflächenveränderung von<br>Nickelproben während der Implantation . . . . . | 67 |
| V.1.1   | Implantation bei Zimmertemperatur . . . . .                                                          | 67 |
| V.1.2   | Implantation bei höheren Temperaturen<br>(> Zimmertemperatur) . . . . .                              | 77 |

|      |        |                                                                                                           |     |
|------|--------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| V.   | V.2    | Thermische Desorption von Helium aus Nickel und thermische Oberflächenveränderung nach der Implantation . | 81  |
|      | V.2.1  | Veränderung der thermischen Desorption mit der Fluenz . . . . .                                           | 81  |
|      | V.2.2  | Thermische Oberflächenveränderung und Tiefenprofile . . . . .                                             | 83  |
|      | V.2.3  | TEM-Untersuchungen . . . . .                                                                              | 93  |
|      | V.2.4  | Abhängigkeit der thermischen Desorption von der Implantationstemperatur . . . . .                         | 93  |
|      | V.2.5  | Abhängigkeit der thermischen Desorption von der Beschußenergie und Oberflächenveränderung . . . .         | 94  |
|      | V.3    | Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse . . . . .                                                      | 100 |
| VI.  |        | DISKUSSION DER MESSERGEBNISSE . . . . .                                                                   | 102 |
|      | VI.1   | Aufsammeln, Heliumreemission und Blisterbildung . . . . .                                                 | 102 |
|      | VI.1.1 | Aufsammeln und Reemission . . . . .                                                                       | 102 |
|      | VI.1.2 | Heliumreemission und Blisterbildung . . . . .                                                             | 106 |
|      | VI.1.3 | Blistermodelle . . . . .                                                                                  | 113 |
|      | VI.1.4 | Folgerungen aus der Modellvorstellung . . . . .                                                           | 118 |
|      | VI.2   | Thermische Desorption und thermische Oberflächenveränderung . . . . .                                     | 120 |
|      | VI.2.1 | Temperaturbereich I: bis 300° C . . . . .                                                                 | 122 |
|      | VI.2.2 | Temperaturbereich II: größer als 300° C . . . . .                                                         | 134 |
|      | VI.3   | Zusammenfassende Diskussion . . . . .                                                                     | 142 |
| VII. |        | ANHANG . . . . .                                                                                          | 144 |
|      |        | LITERATUR . . . . .                                                                                       | 147 |

## I. Einleitung

### I.1 Bedeutung

Da Helium in Metallen praktisch nicht löslich ist (von den Driesch 1980), findet man in der Natur Helium-Metall-Systeme nur dann, wenn es durch den  $\alpha$ -Zerfall von Atomkernen, wie beispielsweise in Uran, in das Metall eingelagert wird. Dies kann dazu benutzt werden, das Alter eines Minerals zu bestimmen (Heliummethode). Eine größere Bedeutung besitzt das Helium-Metall-System, seitdem Kernspaltungsreaktoren arbeiten und über  $(n,\alpha)$ -Prozesse Helium in den Wandmaterialien erzeugen, wodurch sich deren Eigenschaften verändern (Versprödung). Eine besonders intensive Beladung von Materialien mit Helium findet in einem zukünftigen Fusionsreaktor statt, in dem Deuteronen und Tritonen zu einem  $\alpha$ -Teilchen und einem Neutron "verbrannt" werden.

Aufgrund des nicht vollständigen magnetischen Einschlusses des Plasmas im Reaktorgefäß können auf die Gefäßwände Heliumionen mit Energien bis zu etwa 3,5 MeV treffen, in diese eindringen und nach Abbremsung im Metallgitter aufgesammelt werden. Die Heliumteilchenflüsse betragen dabei etwa  $10^{13} - 10^{14}$  Teilchen/cm<sup>2</sup>·s mit häufigsten Energien zwischen 1 und 100 keV.

Helium wird jedoch auch durch die Einlagerung von aus dem Plasma entwichenem Tritium und Zerfall zu  $^3\text{He}$  in der Reaktorwand erzeugt, sowie durch  $(n,\alpha)$ -Prozesse. Mit Hilfe von Beschleunigermaschinen ist es möglich, das Helium-Metall-System durch Implantation von Heliumionen unter definierten Experimentierbedingungen herzustellen und damit die Grundlage für weitere Untersuchungen zu schaffen.

Im Metallgitter wird eingeschossenes Helium nach seiner Abbremsung vor allem in Leerstellen angelagert (Kornelsen 1972); bei höheren Beschußmengen ( $\sim 10^{13} - 10^{14}$  He<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>) bilden sich Heliumleerstellenkomplexe (Kornelsen 1972), und bei weiterem Beschuß kleine Heliumblasen ( $\emptyset \sim 1$  nm) im Metallgitter. Für Heliumbeschuß auf Molybdän, Nickel, Edelstahl und

Kupfer finden Sass und Eyre (1973), Roth und Jäger (1980), bzw. Johnson und Mazey (1980) bei einer Fluenz von ca.  $10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  die Ausbildung eines Blasengitters mit einem Blasendurchmesser von etwa 1 nm und einem Gitterabstand von 6 - 9 nm. Weiterer Beschuß führt dann bei Fluenzen von einigen  $10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  zu Veränderungen im Helium-Metall-System, die im wesentlichen in drei Gruppen zusammengefaßt werden können:

a) Änderung der Oberflächenstruktur:

Dabei entstehen kuppelförmige Aufwölbungen, sog. Blister (Abb. 1) auf der beschossenen Metalloberfläche, oder es löst sich die gesamte beschossene Schicht ab (sog. flaking). Diese Prozesse sind u.a. abhängig vom Material, dessen Vorbehandlung der Beschußtemperatur und -energie.

b) Verstärkte Gasreemission von Helium:

Während bei kleineren Fluenzen ( $< 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) bis auf den kinematisch an der Metalloberfläche reflektierten Anteil sämtliches Helium aufgesammelt wird, erhält man nun zusätzlich Heliumreemission. Das heißt, es wird weniger Helium aufgesammelt.

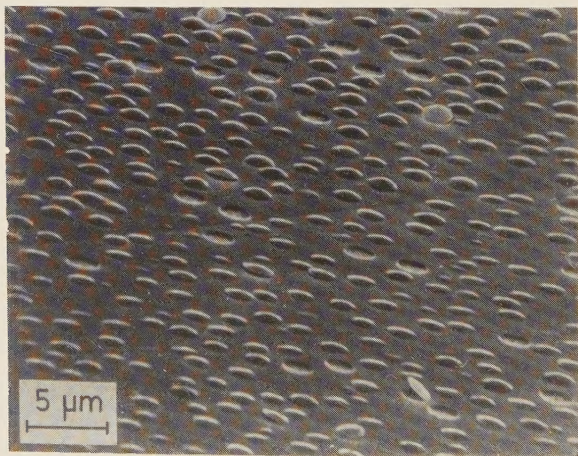


Abb. 1: Blister nach Beschuß einer Nickelprobe bei Zimmertemperatur  
 $E_{\text{He}} = 40 \text{ keV}$ ;  $F = 1,2 \times 10^{18} (\text{He}^+/\text{cm}^2)$ .

c) Blasenstrukturänderung:

Die oben beschriebenen Blasengitter lösen sich auf, es bilden sich kanalartige Verbindungen zwischen den Blasen (Roth und Jäger 1980), und es kommt zur Blasenvereinigung (Fenske 1979). Es findet also eine Änderung im "Bindungsverhalten" zwischen Helium und Metall statt.

Bei Beschuß mit sehr hohen Fluenzen ( $> 10^{19} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) beobachtet man dann eine Oberflächenstruktur, die von der Zerstäubung der Oberfläche durch den Heliumionenstrahl mitbestimmt ist (Rillen, Nadelstruktur). Es wird dann auch kein zusätzliches Helium mehr aufgesammelt (Sättigung), und die Blasen in der Probe haben sich zu einem Netzwerk von Kanälen zusammengeschlossen (Roth und Jäger 1980).

Zusammenfassende Darstellungen über die Auswirkung der Heliumimplantation in Metallen wurden von Roth (1975), Das et al. (1976) und Scherzer (1982) gegeben. Ein großer Teil von Untersuchungen befaßt sich mit den unter a), b) und c) genannten Veränderungen. Ein Schwerpunkt dabei ist die Erforschung der Mechanismen der Blister- und Flakebildung, wozu im wesentlichen zwei Modellvorstellungen existieren:

Das Gasdruckmodell, vorgeschlagen von Primak et al. (1966), Milacek et al. (1968), Blewer und Maurin (1972), Das und Kaminsky (1973), Erents et al. (1973), McCracken (1974) und Evans (1975 und 1977) nimmt an, daß die Blister durch die Entstehung eines Gasvolumens unterhalb der Beschußfläche, welches unter Überdruck steht, gebildet werden, indem dieser Überdruck die Aufwölbung der Oberfläche verursacht. Evans (1977) hat dazu ausführliche Rechnungen durchgeführt (s. II.5).

Das andere Modell nach Behrisch et al. (1975a), Risch et al. (1977) und EerNisse und Picraux (1977) benützt die experimentelle Erkenntnis, daß laterale Spannungen im beschossenen Material aufgebaut werden. Mit Hilfe der Theorie der elastischen Platten zeigen Risch et al. und EerNisse und Picraux, daß zusammen mit einer Kraftkomponente senkrecht zur Oberfläche eine Aufwölbung zum Blister durch laterale Spannungen möglich ist (s. II.5). Keines der beiden Modelle kann bisher alle experimentellen Beobachtungen in Zusammenhang mit der Blisterbildung befriedigend erklären.

Es ist deshalb erforderlich, zusätzliche Experimente auszuführen, die neue Erkenntnisse über die Helium-Metall-Wechselwirkung bei Implantation liefern und damit auch zusätzliche Hinweise auf den Mechanismus der Blisterbildung geben. Damit beschäftigt sich diese Arbeit am Beispiel der Implantation von Helium in Nickel.

## I.2 Aufgabenstellung

Bisher wurden die unter a), b) und c) aufgeführten Veränderungen des Helium-Metall-Systems im wesentlichen jeweils für sich isoliert erforscht. In dieser Arbeit wird die Korrelation zwischen Oberflächenveränderung (Blisterbildung) und Gasreemission durch simultane Messung beider Vorgänge während des Ionenbeschusses untersucht. Mit den daraus gewonnenen Erkenntnissen wird dann die Entwicklung des Implantationstiefenprofils von Helium in Nickel in Abhängigkeit von der Fluenz gemessen und die Helium-Metall-"Bindung" mit Hilfe der Methode der thermischen Desorption untersucht.

Diese Messungen werden bei verschiedenen Beschußenergien und Beschußtemperaturen mit ein- und polykristallinen Nickelproben ausgeführt. Nickel wird deshalb gewählt, weil damit ein relativ gut untersuchtes Metall verwendet wird. Folgende Fragen werden dann mit Hilfe der experimentellen Ergebnisse beantwortet und diskutiert:

- (i) Findet Blisterbildung und Reemission gleichzeitig statt?
- (ii) Wie ändert sich das Helium-Tiefenprofil während des Beschusses?
- (iii) Wie kann Helium aus den Festkörpern entweichen?
- (iv) Welche Auswirkungen haben die Meßergebnisse auf die Blistermodelle?
- (v) Wie wird Helium bei hohen Fluenzen ( $> 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) thermisch freigesetzt und welche Rückschlüsse lassen diese Ergebnisse auf die Helium-Metall-"Bindung" (trapping) zu?
- (vi) Ändert sich die Helium-Metall-"Bindung" durch die Blisterbildung?
- (vii) Welcher Zusammenhang besteht zwischen der thermischen Oberflächenveränderung implantierter Proben und der thermischen Gasfreisetzung?

Dazu muß eine neue Meßapparatur aufgebaut werden, die in situ folgende Experimente ermöglicht:

- (i) Implantation bei verschiedenen Probertemperaturen
- (ii) Messung der Heliumreemission
- (iii) Messung der Blisterbedeckung
- (iv) Messung der Heliumtiefenprofile
- (v) Messung der thermischen Desorption von implantierten Proben.

Zusätzlich werden die Probenoberflächen mit einem Lichtmikroskop (LM), einem Rasterelektronenmikroskop (REM), sowie - bei zwei Proben - mit einem Transmissionselektronenmikroskop (TEM) untersucht.

### 1.3 Übersicht

In den hier anschließenden Kapiteln werden folgende Themenkreise behandelt:

Kapitel II beschäftigt sich mit den experimentellen und theoretischen Grundlagen der Helium-Metall-Wechselwirkung, ausgehend vom Energieverlust des in das Metall eindringenden Ions und der dadurch bestimmten Reichweite, über die Strahlenschäden, das Aufsammeln, die Blisterbildung, bis zur Reemission und Diffusion des Heliums. Dabei wird - wenn es möglich ist - besonders auf die neueren Erkenntnisse des Systems Helium-Nickel eingegangen.

Im III. Kapitel werden die für die oben genannten Messungen verwendeten Methoden ausführlicher beschrieben, und im Kapitel IV wird die Meßapparatur vorgestellt. Zusätzlich findet sich dort eine Beschreibung der Versuchsbedingungen sowie die Fehlerbetrachtung der in Kapitel V dargestellten Meßergebnisse. Diese sind in zwei Gruppen unterteilt. Zunächst werden die Ergebnisse aus den Messungen während der Heliumimplantation vorgestellt und danach die Ergebnisse aufgrund der thermischen Desorption und der damit verbundenen Veränderung angegeben.

In Kapitel VI findet eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse unter Berücksichtigung der in II.2 gestellten Fragen statt.

Im Kapitel VII schließlich sind Rechnungen ausführlicher dargestellt, auf die im Text verwiesen wird.

## II. Einschub von leichten Ionen in Metalle

Treffen energiereiche ( $E_0 \gtrsim 100$  eV), nicht relativistische, leichte Ionen ( $H^+$ ,  $D^+$ ,  $He^+$ ) auf einen Festkörper, so erleiden sie aufgrund von Stößen mit den Elektronen und den Gitteratomen einen Energieverlust und eine Änderung ihrer Bewegungsrichtung. Letzteres führt dazu, daß ein Teil der Ionen reflektiert wird, also den Festkörper wieder verläßt. Die restlichen Ionen dringen in den Festkörper ein und haben nach Durchlaufen einer bestimmten Reichweite ihre Anfangsenergie verloren. Während des Abbremsvorganges können durch Stöße mit den Gitteratomen diese von ihren Gitterplätzen verdrängt werden und - bei ausreichendem Energieübertrag - ihrerseits wieder Gitteratome verlagern. Dadurch entsteht eine Schädigung des Kristalls. Die zur Ruhe gekommenen Projektile können an Gitterdefekten (z.B. Leerstellen) oder Zwischengitterplätzen aufgesammelt werden, oder auch nach Diffusion den Festkörper wieder verlassen. Aufgrund der Einlagerung dieser Fremdatome und der Schädigung wird die Struktur des Festkörpers verändert, so daß bei hohen Fremdatomkonzentrationen ( $\rho_{\text{gas}}/\rho_{\text{Metall}} \lesssim 1$ ,  $\rho_{\text{gas}}$  = Gasatomkonzentration;  $\rho_{\text{Metall}}$  = Metallkonzentration) Oberflächenveränderungen beobachtet werden können (Blisterbildung). Sättigung des Festkörpers mit Fremdatomen führt dann zur verstärkten Reemission eingeschossener Ionen.

### II.1 Energieverlust

Beim Stoß eines Ions mit einem Gitteratom verliert das Ion aufgrund folgender Wechselwirkungen einen Teil seiner Energie:

- a) elektronische Anregung und Ionisation des Gitteratoms
- b) kollektive Anregung der Leitungselektronen (Plasmonenanregung)
- c) Ladungsaustausch
- d) Energieübertrag auf das gesamte Rumpfatom.

Man kann diesen komplexen Vorgang in zwei Gruppen unterteilen und dann getrennt voneinander betrachten (Bohr 1948, Lindhard et al. 1961, 1963):

- in die inelastische Wechselwirkung mit den Elektronen, die zum sogenannten elektronischen Energieverlust führt, und
- in die elastische Wechselwirkung mit dem Rumpfatom, die den sogenannten nuklearen Energieverlust bewirkt.

Für den gesamten differentiellen Energieverlust (Energieverlust/Weglänge) eines Ions mit Energie E gilt dann:

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right) = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_n \quad (1)$$

$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{e,n}$  = : differentieller elektronischer bzw. nuklearer Energieverlust.

Für ein Ion-Gitteratom-Paar hängen die Beträge der einzelnen Summanden von der Ionenenergie E ab und tragen danach unterschiedlich zum gesamten differentiellen Energieverlust bei.

#### a) Elektronischer Energieverlust:

Bei kleinen Ionenenergien, bei denen die Projektilgeschwindigkeit  $v_{ion}$  sehr klein gegen die Bohr'sche Geschwindigkeit ist

( $v_{ion} \ll \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{\hbar}$ ) ergibt sich nach den theoretischen Arbeiten von Fermi und Teller (1947), Lindhard (1954, 1961, 1963) und Firsov (1959) für den differentiellen elektronischen Energieverlust:

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e \sim v_{ion} \quad (2)$$

Bei hohen (nichtrelativistischen) Ionenenergien gilt für den differentiellen elektronischen Energieverlust die Bethe-Bloch-Formel (Bethe 1930, Bloch 1933)

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e \sim \frac{1}{v_{ion}^2} \cdot \ln \left( \frac{2 m_e v_{ion}^2}{J} \right) \quad (3)$$

$m_e$  = Elektronenmasse

$J$  = mittlere Anregungsenergie des Atoms.

Im Gebiet zwischen diesen beiden Energiebereichen besitzt  $\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e$  ein Maximum. Varelas et al. (1970) geben dafür eine Interpolationsformel an.

#### b) Nuklearer Energieverlust:

Beim nuklearen Energieverlust wird auf ein Gitteratom eine Energie T vom Ion mit Energie E übertragen. Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß eine Energie zwischen T und T+dT übertragen wird, beschreibt der

differentielle Wirkungsquerschnitt für Energieübertrag:  $\sigma(E,T)$ .

Damit ist der differentielle nukleare Energieverlust dann:

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_n = \rho \cdot \int_0^{T_{\max}} T \cdot \sigma(E,T) dT \quad (4)$$

mit  $\rho$  = Gitteratomdichte

$T_{\max}$  = maximale in einem elastischen Stoß übertragbare

Energie

$$= \frac{4M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2} E; \quad \begin{array}{l} M_1 = \text{Masse des Ions} \\ M_2 = \text{Masse des Gitteratoms} \end{array}$$

Um dies zu berechnen, muß  $\sigma(E,T)$  bekannt sein, wofür man wiederum die Kenntnis des Wechselwirkungspotentials benötigt. Für Ionenenergien im keV-Bereich werden dafür aufgrund der Abschirmung der Kernladungen durch Elektronen abgeschirmte Coulombpotentiale benutzt.

Mit Hilfe eines Thomas-Fermi-Potentials haben Lindhard et al.

(1961, 1963) eine Beziehung zwischen dimensionslosen Längen- ( $\rho$ ) und Energieparametern ( $\epsilon$ ) abgeleitet und damit für beliebige Projektil-Gitteratom-Kombinationen eine universelle Kurve  $\frac{d\epsilon}{d\rho}$  als Funktion von  $\epsilon^{1/2}$  erhalten.

Vergleicht man damit den differentiellen nuklearen Energieverlust mit dem von Lindhard et al. (1961, 1963) angegebenen differentiellen elektronischen Energieverlust (Beziehung (2)), so erhält man für 40 keV  $^3\text{He} \rightarrow \text{Ni}$ , daß

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_n \text{ etwa } 5\% \text{ von } \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e \text{ ist.}$$

Dies stimmt recht gut mit den von Ziegler (1977), (Abb. 2) für He auf Nickel angegebenen differentiellen Energieverlustdaten überein. Für höhere Energien nimmt der Anteil des nuklearen Energieverlustes weiter ab.

Erst bei Heliumenergien unter 2 keV sind die Beträge von  $\left(-\frac{dE}{dx}\right)_n$  und  $\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e$  etwa ähnlich groß.

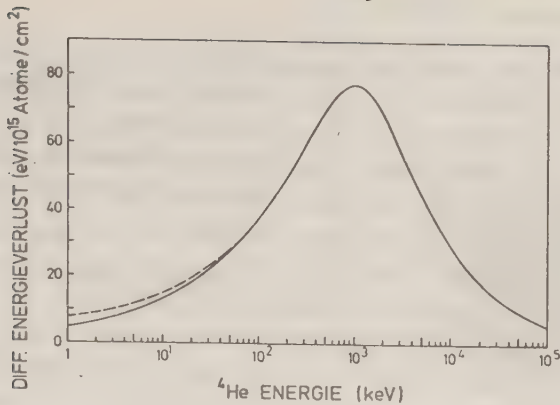


Abb. 2: Differentieller Energieverlust von  $^4\text{He}$  in Nickel.

Für  $^3\text{He}$  derselben Energie wie  $^4\text{He}$  ist der differentielle Energieverlust bei  $4/3 \cdot E(^4\text{He})$  (Ziegler 1977).

---- nuklearer und elektronischer differentieller Energieverlust  
 ——— elektronischer Energieverlust

## II.2. Reichweiten

Aus dem differentiellen Energieverlust erhält man die gesamte Reichweite  $R$  durch Integration:

$$R = \int_0^{E_0} \left( - \frac{dx}{dE} \right) \cdot dE \quad (5)$$

mit  $E_0$  = Anfangsenergie des Projektils.

Aufgrund der Massenverhältnisse zwischen Gitteratom und Projektil bzw. Elektron und Projektil wird die Richtungsänderung der Ionenbahn durch die Stöße mit den Rumpfatomen bestimmt. Dadurch ist  $R$  von (5) immer größer als die auf die ursprüngliche Bahnrichtung (vor dem ersten Stoß) projizierte Reichweite  $R_p$ . Durch diese Stöße ergibt sich auch eine laterale Reichweite  $R_L$ . In amorphen Festkörpern sind die Stoßparameter für Stöße mit Gitteratomen statistisch verteilt, wodurch sich für einen anfangs monoenergetischen Ionenstrahl eine Reichweitenverteilung ergibt. Diese ist vielfach gaußförmig (Mayer et al. 1970). Polykristallines Material sowie Einkristalle, die nicht in dicht gepackter Gitterrichtung beschossen werden, können näherungsweise als amorph bezüglich der Verteilung der Stoßparameter betrachtet werden.

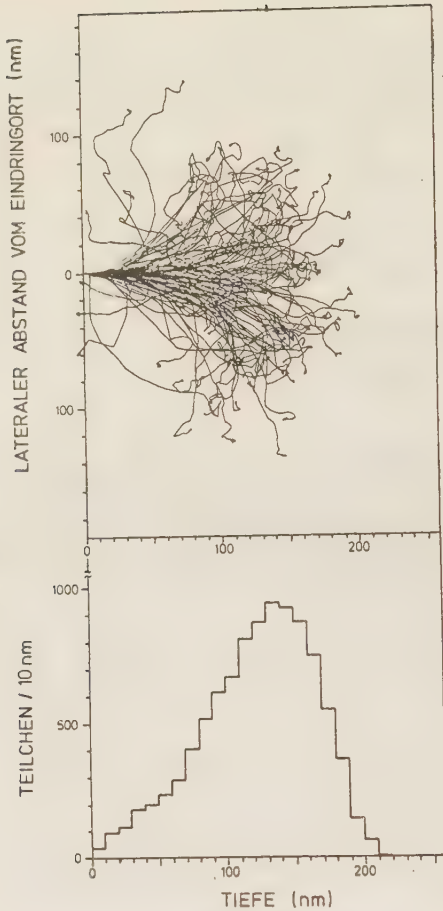


Abb. 3:

Mit dem Computer Programm  
TRIM berechnete pro-  
jizierte Ionenbahnen a)  
und Reichweitenverteilung  
b) für

40 keV  $^3\text{He} \rightarrow \text{Ni}$

a)

b)

Wird jedoch in einen Einkristall in dicht gepackter Gitterrichtung eingeschossen, so ergeben sich aufgrund des Gitterführungseffektes (Lutz und Sizmann 1963, 1964) erheblich größere Reichweiten für einen Teil der Ionen, die auf gittergeführten Bahnen in den Kristall eindringen. Ein anderer Teil wird bereits an der Oberfläche aus dieser Richtung gestreut und erreicht dann Reichweiten ähnlich den im amorphen Material.

Ist das Ion auf die thermische Energie des Gitters abgebremst, so kann es auf Zwischengitterplätzen, substitutionellen Plätzen oder an Versetzungen eingefangen werden. Findet Diffusion des Fremdatoms statt, so wird die Reichweitenverteilung mit der Zeit verbreitert.

Berechnungen der projizierten Reichweitenverteilung für leichte Ionen sind von Schjøtt (1966), von Weißmann und Sigmund (1973), von Littmark et al. (1976) und von Winterbon (1975) durchgeführt worden.

Eine andere Methode, Reichweitenverteilungen zu erhalten, ist die Computersimulation mit Hilfe eines Monte-Carlo-Codes für die statistische Verteilung der Stoßparameter und mit angenommenen Wechselwirkungspotentialen. Dabei kann sowohl der Beschuß von kristallinem Material (poly- und einkristallin) (MARLOW) als auch der von amorphen Proben (TRIM) simuliert werden. Ein Ergebnis davon (Abb. 3a, b) zeigt eine Reichweitenverteilung für 40 keV  $^3\text{He}$  auf Nickel, berechnet mit dem Programm TRIM. Die schwarzen Linien in Abb. 3a geben die auf die Seitenebene projizierten Wegstrecken der Ionen wieder, wobei die an der Oberfläche endenden bedeuten, daß das Helium den Festkörper hier wieder verlassen hat, also reflektiert wurde.

### II.3 Strahlenschäden

Bei Stößen der Ionen mit Gitteratomen können diese von ihrem Gitterplatz dauerhaft verlagert werden. Dazu muß das Ion mindestens eine Schwellenenergie  $E_s$  besitzen:

$$E_s = \left[ \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2} \right]^{-1} \cdot E_d \quad (6)$$

$M_1$  = Masse des Ions

$M_2$  = Masse des Gitteratoms

$E_d$  = Verlagerungsenergie.

Die Verlagerungsenergie  $E_d$  ist vom Material und von der Rückstoßrichtung im Kristall abhängig. Für Nickel beträgt sie im Mittel 33 eV (Leteurtre 1980) und ist damit erheblich größer als die Summe der Bildungsenergien für eine Leerstelle und ein Zwischengitteratom ( $\sim 6$  eV Leteurtre 1980). Der Grund dafür ist, daß das Gitteratom sich weit genug von seiner Leerstelle entfernen muß, um außerhalb des Rekombinationsvolumens ( $\sim 100$  Atomvolumen, Lehmann 1977) für spontane Rekombination zur Ruhe zu kommen.

Dieses primäre Rückstoßatom kann nun seinerseits bei genügend großer übertragener Energie  $T_p$  Frenkeldefekte produzieren und damit eine Stoßkaskade auslösen.

Als Maß für den Umfang der Gitterschädigung durch Bestrahlung wird die Zahl der Verlagerungen  $g$  eines Atoms nach einer gewissen Bestrahlungsdosis im bestrahlten Volumen  $V$ , die sogenannten d.p.a. (displacements per atom) angegeben:

$$g = \frac{n_d \cdot n_R \cdot F \cdot A}{\rho \cdot V} \quad (7)$$

$n_d$  = Die durchschnittliche Zahl der Verlagerungen pro primäres Rückstoßatom

$n_R$  = Zahl der primären Rückstoßatome/Ion

$F$  = Fluenz: Anzahl der pro  $\text{cm}^2$  auf den Festkörper geschossener Ionen

$A$  = beschossene Fläche

$V$  = bestrahltes Volumen

$\rho$  = Teilchendichte des Festkörpers.

während  $F$ ,  $A$ ,  $V$ ,  $\rho$  relativ gut gemessen werden können, müssen für  $n_d$  und  $n_R$  Annahmen gemacht werden:

Die durchschnittliche Zahl der Verlagerungen ( $n_d$ ) pro primäres Rückstoßatom hängt ab von der Wahrscheinlichkeitsverteilung der auf die sekundären Rückstoßatome übertragenen Energie  $T_s$ , welche wiederum von Wechselwirkungspotential abhängt. Zur Berechnung von  $n_d$  wurden mehrere Methoden vorgeschlagen:

Kinchen und Pease (1955) berechneten  $n_d$  zu:

$$n_d = \frac{T_p}{2E_d} \text{ für } T_p > 2E_d; \quad n_d = 1 \text{ für } E_d \leq T_p \leq 2E_d \quad (8)$$

$$n_d = 0 \text{ für } T_p < E_d$$

Dabei wird vorausgesetzt, daß die Atomstöße elastische Harte-Kugel-Stöße sind und keine Rekombination von Leerstellen mit Zwischengitteratomen erfolgt.

Nelson et al. (1972) schlugen vor,  $n_d$  zu berechnen nach:

$$n_d = \frac{\alpha \cdot B \cdot W(T_p) \cdot T_p}{\gamma(T_p) \cdot E_f} \quad (9)$$

Dadurch soll die Überschätzung von  $n_d$  nach Kinchin und Pease verhindert werden, indem man berücksichtigt, daß Atomstöße "weicher" sind als Harte-Kugel-Stöße (Korrekturfaktor  $\approx 0,75$ ). Mögliche Rekombinationen von Frenkeldefekten werden durch den Faktor  $\beta$  berücksichtigt. Da nur ein Teil von  $T_p$  in elastischen Stößen verbraucht wird und der andere durch inelastische Wechselwirkung nicht zur Verlagerung beiträgt, wurde der Faktor  $W(T_p)$  eingeführt.  $\chi(T_p)$  trägt möglicher Gitterführung des Atoms Rechnung, wodurch  $n_d$  ebenfalls verkleinert wird, und  $E_f$  gibt die durchschnittliche Fokussierungsenergie an. Durch Fokussierung von Stößen entlang von dicht gepackten Gitterrichtungen wird Energie transportiert (und verbraucht), die höher sein kann als die mittlere Verlagerungsenergie (z.B. Lermann 1977).

Eine weitere Möglichkeit,  $n_d$  zu berechnen, ist eine abgewandelte Kinchin- und Pease-Formel (Leteurtre 1980), die bis auf den Faktor  $\xi$  der von Sigmund (1969) angegebenen Beziehung entspricht:

$$n_d = \xi(T_p) \cdot \frac{0.8 \cdot T_p^*}{2 E_d} \quad (10)$$

$\xi(T_p)$  = Effektivitätsfaktor: 0,3 für  $T_p \gg$  einige keV  
1 für  $T_p \ll$  einige keV.

$T_p^*$  = der Anteil des nuklearen Energieverlustes von  $T_p$ .

Um  $g$  zu berechnen, benötigt man noch den Faktor  $n_R$ . Er kann abgeschätzt werden als Quotient des gesamten mittleren nuklearen Energieverlustes  $\bar{E}_n$  eines Ions dividiert durch die mittlere, auf ein primär angestoßenes Atom übertragene Energie  $\bar{T}_p$ :

$$n_R = \frac{\bar{E}_n}{\bar{T}_p} \quad (11)$$

Für die Implantation von  $40 \text{ keV } ^3\text{He}$  in Nickel wurde mit dem Programm TRIM  $\bar{E}_n$ ,  $\bar{T}_p$  und  $n_R$  (TRIM) berechnet unter der Annahme eines Molière-potentials für die Ion-Gitteratom-Wechselwirkung und einer Energieschwelle  $E_d$  von 33 eV:

Man erhält  $\bar{E}_n = 3770 \text{ eV}$   
 $\bar{T}_p = 163 \text{ eV}$  )  $\rightarrow n_R \approx 23$   
 $n_R^{\text{P}}(\text{TRIM}) = 18$

Die Differenz zwischen  $n_R$  und  $n_R^{\text{P}}(\text{TRIM})$  resultiert daher, weil nicht der gesamte nukleare Energieverlust in Verlagerungsstößen aufgetraut wird.

Der nukleare Energieverlust des Heliumions beträgt also weniger als 10 % der Anfangsenergie, und es werden bevorzugt kleine Energien auf die primären Rückstoßatome übertragen. Die meiste Energie der primären Rückstoßatome wird daher in Stößen mit den Rumpfatomen verbraucht.

Für eine Fluenz von  $F = 1 \cdot 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ , einer maximalen Reichweite von 200 nm und  $n_R$  (TRIM) = 18 ergeben sich für g folgende Werte:

|                      |        |    |      |
|----------------------|--------|----|------|
| g (Kinchin & Pease)  | $\sim$ | 25 | dp a |
| g (Nelson)           | $\sim$ | 17 | dp a |
| g (abgewandelte K+P) | $\sim$ | 20 | dp a |

Das Kinchin und Pease-Modell ergibt - wie zu erwarten ist - den größten Wert, während Nelson et al. (1972) die mögliche Unterschätzung von  $n_d$  nach ihrer Formel aufgrund der Unsicherheiten im Faktor  $1/\gamma$  begründet sehen.

Die entstandene Defektstruktur im Kristall besteht nach einer derartigen Gitterschädigung nicht mehr aus isolierten Punktdefekten (Leerstellen, Zwischengitteratomen). Bei Bestrahlungstemperaturen, bei denen Leerstellen nicht beweglich sind (z.B. Raumtemperatur für Nickel; Wycisk et al. 1978), während Zwischengitteratome durch den Festkörper wandern können, bilden sich Versetzungsringe von Zwischengitteratomen (Roth und Jäger 1980, Leteurtre 1980). Die Dichte dieser Defektstruktur nimmt mit zunehmender Fluenz zu, und bei hohen Fluenzen ( $\sim 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) entsteht ein Versetzungsnetzwerk in der beschossenen Probenschicht. Wird mit Heliumionen zu noch höheren Fluenzen geschossen, so erhält man als Ergebnis der Einlagerung von Helium in das Metall eine weitere Defektstruktur, nämlich Blasenbildung.

## II.4. Aufsummeln von implantiertem Helium

Das Aufsummeln von Helium in Metallen wird experimentell mit verschiedenen Methoden untersucht, deren Anwendungsbereich bisher mit der auf die Probe geschossenen Fluenz und der verwendeten Ionenenergie korreliert ist. Für kleine Fluenzen ( $\lesssim 10^{15} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) und kleine Beschußenergien ( $\lesssim 5 \text{ keV}$ ) wird die Methode der thermischen Desorption benützt, um quantitative Aussagen über die Helium-Metall-Bindung zu machen.

Für Fluenzen, die größer als etwa  $10^{15} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  sind und bei höheren Energien ( $\gtrsim 5 \text{ keV}$ ) lassen sich mit dieser Methode aufgrund der komplizierten Defektstruktur nur in seltenen Fällen eindeutige Ergebnisse finden (s. III.1.2). Es werden stattdessen mit Transmissionselektronenmikroskopen Beobachtungen der Defekt- und Blasenstruktur durchgeführt, deren Aussagen jedoch im wesentlichen qualitativer Natur sind.

Mit Hilfe von optischen Messungen (Absorption von UV-Licht in implantierten Proben) konnten in letzter Zeit (Donnelly et al. 1980) zusätzliche Erkenntnisse gesammelt werden.

Neben diesen experimentellen Methoden bestehen auch eine Reihe von theoretischen Betrachtungen über die Einlagerung von Helium in Metallen. Im folgenden werden die wichtigsten Ergebnisse der Untersuchungen vorgestellt:

### a) $F \lesssim 10^{15} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ : Helium in Leerstellen und in Helium-Leerstellen-komplexen

Grundlegende Erkenntnisse über das Aufsummeln von Helium in Metallen (Molybdän und Nickel) hat Kornelsen (1972, et al. 1974) durch seine thermischen Desorptionsexperimente nach Beschuß mit bis zu  $10^{14} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  und Ionenenergien bis 250 eV gefunden. Die Implantation ist dabei sehr oberflächennah ( $\lesssim 2 \text{ nm}$ ). Er stellt fest, daß Helium praktisch nur dann aufgesammelt wird, wenn das Metallgitter geschädigt ist und Leerstellen besitzt. Ansonsten verläßt eingedrungenes Helium über das Zwischengitter wieder den Festkörper. Die Schädigung des Gitters erfolgt bei den Experimenten an Nickel durch Beschuß mit

5 keV Neon-Ionen vor der Heliumimplantation. Die verschiedenen Helium-Desorptionsstufen ordnete Kornelsen verschiedenen Dissociationsstufen von He und Leerstellen bzw. Helium-Leerstellenkomplexen zu. Danach kann in Wolfram eine Leerstelle bis zu 4 Helium-Atome binden. Voraussetzung für die Interpretation dieser Spektren ist, daß der freisetzungsbestimmende Prozeß die Dissoziation ist und kein Wiedereinfang an Heliumsenken erfolgt, was durch die Nähe der Oberfläche angenähert ist.

Für Helium in Nickel erhält er mit der Methode nach Redhead (1962) (siehe Kap. III.1.3) für die Bindung eines Heliums in einer Leerstelle eine Energie von 2,10 eV. Für ein Helium in einer zweifach besetzten Leerstelle findet er 1,70 eV. Mit Helium besetzte Leerstellen sind nach Kornelsen möglicherweise auch an ein substitutionelles Neon-Atom in nächster und übernächster Nachbarentfernung gebunden.

Theoretische Untersuchungen von Wilson und Johnson (1972) zur Bildungsenergie von Helium in verschiedenen Gitterplätzen einiger Metalle zeigen, daß die Bildungsenergie für ein substitutionelles Heliumatom in einer bestehenden Leerstelle energetisch immer günstiger ist als die für ein interstitielles He-Atom. Für Ni beträgt die Bildungsenergie 1,36 eV für den substitutionellen, und 4,60 eV für den Zwischengitterplatz. Die Differenz ergibt dann die Aktivierungsenergie für die Freisetzung aus Leerstellen, 3,24 eV. Diese Berechnungen sind jedoch von der Wahl des Wechselwirkungspotentials zwischen Helium-Helium, Helium-Nickel und Nickel-Nickel abhängig.

Andere Rechnungen von Wilson und Bisson (1974) zu den Messungen von Kornelsen an Wolfram (1972) ergeben, daß eine Leerstelle bis zu etwa 30 Heliumatome aufnehmen kann. Die Bindungsenergie fällt jedoch nach dem 6. He-Atom stark ab.

Helium-Leerstellenkomplexe berechnen Wilson et al. (1973) auch für Kupfer. Dabei zeigt sich, daß diejenigen Helium-Leerstellenkomplexe ( $\text{He}_n\text{V}_m$ ) am stabilsten sind, für die  $n = m$  gilt ( $m$  = Zahl der Leerstellen,  $n$  = Zahl der He-Atome in einem Komplex). Die Bindungsenergie nimmt danach für das letzte gebundene Heliumatom bei konstantem  $m$  mit wachsendem  $n$  ab und mit wachsendem  $m$  zu bei konstantem  $n$ .

Ein Helium-Leerstellenkomplex kann sich nach Kornelsen (1972) und van Veen et al. (1977) dadurch vergrößern, daß aufgrund der Gitterverzerrung ein benachbartes Gitteratom aus seiner Position verdrängt und ins Zwischengitter verlagert wird, wenn der  $\text{He}_n\text{V}$ -Komplex eine bestimmte Größe erreicht hat. Dadurch entsteht dann ein  $\text{He}_n\text{V}_2$ -Komplex ( $n = 6$  für Helium in Molybdän, van Veen et al. 1977). Dies kann als der Beginn der Heliumblasenbildung angesehen werden. Neben Leerstellen und Leerstellenkomplexen können auch Versetzungen im Kristall, die über ihr Verzerrungsfeld mit dem von interstitiellem Helium wechselwirken - Baskes et al. (1981), Greenwood et al. (1959), Reed (1977) - Senken für Helium darstellen.

b)  $F > 10^{15} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ : Heliumblasen

Mit zunehmender Fluenz erhält man in den Desorptionsspektren immer zahlreichere und weniger gut aufgelöste Maxima, so daß eine Zuordnung bestimmter Bindungsenergien und Bindungsarten sehr schwierig wird. Da mit der Fluenz jedoch die Heliumdefektkomplexe wachsen, kann man bei  $F \gtrsim 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  Blasenbildung im Kristall bei Beobachtung mit einem TEM erkennen.

Ein Blasengitter, das durch Heliumbeschuß erzeugt wurde, beobachteten zuerst Sass und Eyre (1973) in Molybdän. Roth und Jäger (1980) sowie Johnson und Mazey (1980) beobachteten die Blasenentwicklung in Nickel für bei Zimmertemperatur beschossene Proben. Es zeigte sich, daß für eine Fluenz von  $1 \cdot 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  sich ebenfalls ein Blasengitter entwickelt, dem diese eine kubische Anordnung zumessen mit einer Gitterkonstante von 9,4 nm.

Bei höheren Fluenzen ( $\sim 3 \cdot 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) löst sich diese Struktur auf und man beobachtete den Zusammenschluß von Blasen zu größeren Blasen sowie die Bildung kanalartiger Verbindungen der Blasen untereinander (Roth und Jäger 1980).

Ein Modell für den Mechanismus des Wachstums von Gasblasen während des Beschusses wurde von Evans (1977, 1978), zurückgehend auf Vorstellungen von Greenwood et al. (1959), vorgeschlagen. Unter der Voraussetzung, daß alles Helium in Blasen gesammelt wird und Leerstellen im bestrahlten Metall nicht beweglich sind, nimmt Evans an, daß die Blasen unter Überdruck stehen, d.h.

$$P_B > \frac{2\gamma}{r} \quad (12)$$

$\gamma$  = Oberflächenspannung der Gas/Metall-Grenzfläche,

$r$  = Blasenradius

$P_B$  = Blasendruck.

Wenn der Blasendruck  $P_B$  der Bedingung genügt:

$$P_B = 2\gamma/r + \frac{\mu b}{2\pi r} \ln \frac{r}{r_d} \sim 10^{10} \text{ N/m}^2 \quad (13)$$

$$\mu = 10^{11} \text{ J/m}^3$$

$$\gamma = 1 \text{ N/m}$$

$$r = 1 \text{ nm}$$

$$b = 0.2 \text{ nm} \sim r_d$$

$$b = \text{Burgersvektor}$$

dann können durch die Gasblase Zwischengitterringe erzeugt werden (Loop-punching), ähnlich dem Mechanismus einer Frank-Reed-Quelle. Experimentelle Hinweise auf diesen Mechanismus finden Evans et al. (1981) in Molybdän.

Von Baskes und Wilson (1978) wurde ein Modell für das Blasenwachstum vorgeschlagen (Perkolationsmodell), nach dem Helium-Leerstellenkomplexe (6 Heliumatome in eine Leerstelle in Cu), die innerhalb eines bestimmten Radius liegen, sich aufgrund ihrer Wechselwirkung über die Gitterverzerrung spontan zusammenlagern. Dadurch werden Blasen gebildet, die ihrerseits wieder innerhalb eines gewissen Radius Helium auf sammeln und somit wachsen. Mit Hilfe eines Rechenprogrammes ermitteln sie das gesamte von Blasen besetzte Volumen und die Blasendichte und finden vernünftige Übereinstimmung mit entsprechenden experimentellen

Beobachtungen von Mazey et al. (1977). Blasenwachstum kann jedoch auch durch Blasenkoaleszenz und Leerstelleneinfang erfolgen.

Nach Untersuchungen von Barnes und Mazey bei 800<sup>o</sup> C an Kupfer erfolgt der Zusammenschluß von Gasblasen, so daß für die Blasenradien gilt:

$$\sum_n r_n^2 = R^2 \quad (14)$$

mit  $r_n$  = Blasenradius vor Zusammenlagerung

$R$  = Blasenradius nach Zusammenlagerung.

Diese Beziehung erhält man ebenfalls, wenn man annimmt, daß der Gasdruck in den Blasen im Gleichgewicht mit der Oberflächenspannung ist und für den Blasendruck das ideale Gasgesetz gilt:

$$\text{mit } p_n V_n = m_n \cdot k \cdot T$$

$$V_n = \frac{4}{3} \pi r_n^3$$

$$p_n = \frac{2\gamma}{r_n}$$

$$\frac{8}{3} \pi \gamma r_n^2 = m_n \cdot k \cdot T$$

$$\frac{8}{3} \pi \gamma \sum_n r_n^2 = \sum_n m_n k \cdot T = M k T = \frac{8}{3} \pi \gamma R^2 \quad (15)$$

$p_n$  = Blasendruck in Blase n

$V_n$  = Blasenvolumen der Blase n

$r_n$  = Blasenradius

$\gamma$  = Oberflächenspannung

$m_n$  = Anzahl der Gasatome

Dies bedeutet, daß beim Zusammenschluß von Gasblasen Leerstellen zur Blase wandern müssen, um die Gleichgewichtsbedingung zwischen Blasendruck und Oberflächenspannung herzustellen. Loop-punching als Mechanismus ist dann nicht möglich.

c) Untersuchungen über die Heliumdichte in den Gasblasen

Berechnet man aus den von Roth und Jäger (1980) angegebenen Blasendichten ( $10^{25}/\text{m}^3$ ), Blasenradius (1 nm) und implantierter Heliumdichte ( $\sim 0.2 \times \text{Nickeldichte}$ ) die Heliumdichte in den Gasblasen, so erhält man etwa  $4 \cdot 10^{29} \text{ He}/\text{m}^3$ , wenn angenommen wird, daß alles Gas in Blasen aufgesammelt wird. Extrapoliert man empirische Gasdichte/Gasdruckbeziehungen - Millset al. (1980), Scherzer (1982) - bis zu dieser Dichte, so erhält man Drücke, die größer als  $10^{11} \text{ N}/\text{m}^2$  sind, also etwa eine Größenordnung über dem Wert für die Bildung von Versetzungsringen liegen. Die Schlußfolgerung daraus ist, daß ein großer Teil des Heliums nicht in sichtbaren Blasen sitzt - Kaletta (1976), Johnson et al. (1980) - sondern entweder in Leerstellen oder an Blasen gebunden ist, die im TEM nicht entdeckt werden können ( $r < 1 \text{ nm}$ ).

Johnson und Mazey (1979) sehen eine Unterstützung dieser Annahme darin, daß sie beim Beschuß von mit Helium implantierten Kupferproben mit 1 MeV Elektronen Blasenwachstum feststellten. Ihrer Interpretation, daß Helium aus dem Gitter sich durch einen strahlinduzierten Mechanismus an den Blasen anlagert, steht die Möglichkeit gegenüber, daß auch die Anlagerung von strahlinduzierten Leerstellen Blasenwachstum bewirken kann - Greenwood (1959), Evans (1977). Ein Hinweis für die Annahme, daß nicht alles Helium in Blasen sitzt, ist der große Unterschied der Schwellwerte des Materials, den man erhält, wenn man ihn einmal aus dem gesamten Blasenvolumen, ein anderes Mal aus der Oberflächenverschiebung des Beschußfleckes berechnet. Es zeigt sich, daß die Schwellwerte, die man durch letztere Methode erhält, um einen Faktor 2 größer sind (Roth und Jäger 1980).

Messungen von Donnelly (1980), die die optische Absorption des Elektronenübergangs  $1^1\text{S}_0 \rightarrow 2^1\text{P}_1$  im Helium an implantierten Aluminiumfolien untersuchten, zeigten, daß sich eine Vergrößerung der Anregungsenergie und eine Verbreiterung der Absorptionslinie gegenüber verdünntem Heliumgas ergab. Daraus ermittelten sie eine Heliumdichte in Blasen, die größer als  $10^{29} \text{ He}/\text{m}^3$ , also den oben berechneten Dichten ähnlich ist. Eine Entscheidung über den tatsächlichen Anteil des Heliums, der in Blasen sitzt, sowie über den Blasendruck ist bisher noch nicht gefunden worden.

## II.5 Blisterbildung

Die Blisterbildung auf Metalloberflächen nach Heliumbeschuß hängt von verschiedenen Parametern ab, die einerseits durch den Zustand des Probenmaterials (Zusammensetzung, Temperatur, Materialstruktur, Oberflächenbeschaffenheit, Vorbehandlung), andererseits durch die Art und Weise der Implantation (Energie, Einschußwinkel, Ionenstromdichte) definiert sind. In Nickel beispielsweise wurde bisher Blisterbildung durch Heliumbeschuß mit Ionenenergien von 4 bis 500 keV (Pontau et al., 1980, Das et al. 1978) sowie bei Beschußtemperaturen von Zimmertemperatur bis  $650^{\circ}\text{C}$  (Krotov et al., 1978) beobachtet. Die kritische Fluenz für Blisterbildung, der Durchmesser der Blister, sowie die Dicke des Blisterdeckels nehmen mit der Energie zu. Den Einfluß der Beschußtemperatur hat Bauer (1978) untersucht. Für sieben verschiedene Metalle kann er die Oberflächenveränderung in Gruppen zusammenfassen, deren Grenzen durch die homologe Temperatur  $T/T_m$  ( $T_m$  = Schmelztemperatur in K) gebildet werden. Bis zu  $T/T_m \approx 0,1$  findet er nur Blister. Zwischen  $T/T_m \approx 0,1$  bis etwa 0,35 schält sich die beschossene Schicht ab (Flaking). Von 0,35 bis etwa 0,5 zeigen sich sowohl Blister wie Flakes und größer 0,5 erhält er Blister sowie Löcher.

Ähnlich wirkt auch die Erhöhung der Ionenstromdichte, da durch die vergrößerte Beschußleistung die Probe ebenfalls erwärmt wird (Behrisch et al., 1976). Risch (1978) hat gezeigt, daß für flachere Beschußwinkel zur Probenoberfläche die Größe und Dichte der Blister abnimmt, die kritische Fluenz jedoch zunimmt. Der Einfluß der Kristallorientierung auf die Blisterbildung haben u.a. Verbeek et al. (1974) und Roth (1974) untersucht. Implantation in eine gitterführende Kristallrichtung ergibt eine Vergrößerung des Blisterdurchmessers (etwa um einen Faktor 2 bei 4 keV He  $\rightarrow$  Nb) und der kritischen Fluenz.

Das und Kaminsky (1973) fanden, daß die Blisterdurchmesser auf Metallen um so größer werden, je besser die Kristallstruktur sich der eines idealen Einkristalles annähert. Das Abschälen von Teilen des Beschußflecks wird dadurch ebenfalls begünstigt. Die Blistergröße ist auch abhängig von der geometrischen Größe der Oberflächenrauigkeit

(Sone et al., 1978), da sich eine ebene Gaskonzentrationsverteilung ausbilden muß, um Blister bilden zu können. Ist die Beschußfläche beispielsweise mit Sandpapier vor der Implantation aufgeraut worden, so beobachten Langley et al. (1978) keine Blister oder Abschälungen, während auf polierten Oberflächen unter sonst gleichen Bedingungen Blister gebildet werden.

Auch mechanische Belastung von Beschußproben beeinflußt die Entwicklung der Oberflächentopographie während der Implantation, wie von Ivanov et al. (1978) an Edelstahlproben, die bei verschiedenen Zugspannungen bestrahlt worden waren, gezeigt wurde. Blisterbildung kann dadurch auch verhindert werden. Um Blister zu erhalten, müssen neben der Berücksichtigung der oben genannten Einflüsse, zusätzlich zwei, experimentell und theoretisch gefundene Bedingungen erfüllt sein:

- (i) Es muß eine kritische Heliumkonzentration in der Probe aufgebaut werden (Risch et al., 1977, Bauer et al., 1978), die zwischen 0,3 und 1 Heliumatom pro Metallatom liegt (Scherzer, 1982).

Dazu muß folgende Beziehung erfüllt sein:

$$\frac{1-R}{y} \geq \rho_{\text{krit}}$$

mit  $R$  = Reflexionskoeffizient

$y$  = Zerstäubungskoeffizient

$\rho_{\text{krit}}$  = kritische Konzentration

- (ii) Diese kritische Heliumkonzentration muß zuerst im Innern der Probe und nicht an der Oberfläche erreicht werden (einige nm)  
(Roth et al., 1975, Wilson et al. 1976 a).

Das bedeutet z.B. daß die Abtragung des Probenmaterials an der Oberfläche durch Zerstäubung nicht so intensiv sein darf, daß die kritische Konzentration nicht erreicht wird. Auch die Implantation mit mehreren Energien auf demselben Beschußfleck verhindert Blisterbildung, wenn dadurch (ii) nicht erfüllt wird (Roth et al. 1975, Wilson et al. 1976 a).

Neben einer Vielzahl von experimentellen Untersuchungen zur Blisterbildung (siehe Zusammenstellung von Scherzer, 1982) bestehen

über den Mechanismus dazu theoretische Modellvorstellungen, wobei zwei Modelle - nämlich das Gasdruckmodell und das laterale Spannungsmodell - bisher genauer untersucht wurden. Diese, sowie auch zusätzliche Vorstellungen über den Blistermechanismus werden anschließend dargestellt.

#### a) Blistermodelle

Es ist zweckmäßig, die Blisterbildung in zwei Stadien zu unterteilen (Scherzer, 1982, Wolfer, 1980): Zunächst das Ablösen oder Lockern einer oberflächennahen Schicht vom darunterliegenden Material und dann die Aufwölbung dieser Schicht in die Form der beobachteten Blister. Die Unterschiede in den Modellvorstellungen betreffen im wesentlichen das zweite Stadium der Blisterbildung.

##### (i) Gasdruckmodell (Abb. 4)

Aufgrund der experimentellen Ergebnisse über die Blasenbildung und die Beobachtung, daß die Blister eine zwar raue aber ebene Abrißfläche zeigen, nimmt man hier an, daß sich Gas unter der Fläche des späteren Blisters ansammeln kann und beim Erreichen eines genügend großen Druckes die Blister durch plastische Verformung gebildet werden. Evans (1977) betrachtet dazu ein Blasen-

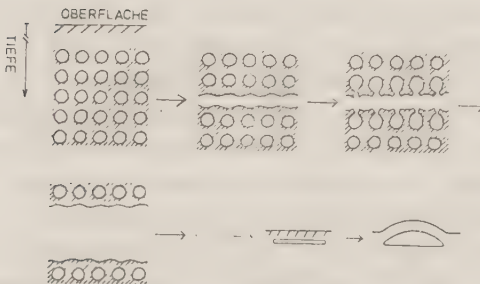


Abb. 4: Blisterbildung nach dem Gasdruckmodell (s. Text)

gitter im Metall, dessen Gitterflächen parallel zur Probenoberfläche orientiert sind. Mit der Annahme, daß die Blasen unter Überdruck stehen und somit eine Kraft auf das Gitter ausüben, berechnet er den kritischen Blasenüberdruck  $P_F$ , bei dem das Material zwischen den Blasen reißt (Interbubble Fracture):

$$P_F = \sigma_F((\pi r^2 \cdot C_b^{2/3})^{-1} - 1) + 2\gamma/r \quad (16)$$

$\sigma_F$  = kritische Bruchspannung

$r$  = Blasenradius

$C_b$  = Blasenkonzentration

$\gamma$  = Oberflächenspannung der Gasblase.

Da die Blasen nach der Vorstellung von Evans durch Bildung von Versetzungsringen wachsen (s. II.4), erfolgt die Reißbildung dann, wenn ein kritischer Blasenradius erreicht ist, bei dem gilt:

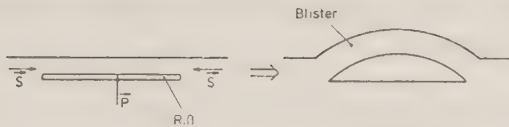
$$P_F = P_B,$$

also der Druck für die Bildung von Versetzungsringen gleich dem kritischen Überdruck ist. Mit Hilfe dieses Radius und der Gleichsetzung von  $P_B$  mit der Rowlinson-Beziehung (Rowlinson, 1963/64) für den Gasdruck in den Blasen berechnet er die experimentell normierte Energieabhängigkeit der kritischen Fluenzen für Mo und bestätigt die experimentelle Erfahrung. Nach Evans ergibt sich durch die Reißbildung eine Volumenvergrößerung und damit ein Druckabfall. Nächstliegende Blasen in benachbarten Ebenen können sich dann zusätzlich in dieses Volumen entleeren und den Überdruck vergrößern. Bei genügend großem Gasdruck in dem Reiß kann sich dann, nach Evans, die Oberfläche zu einem Blister verformen. Dabei muß gelten, daß der Blisterdurchmesser  $d$  direkt proportional zur Blisterdicke  $t$  ist ( $d \sim t$ ). Wird dieser Druck nicht erreicht, so gibt Evans die Möglichkeit an, daß bei genügend großer Ausbreitung des Risses die Oberfläche abgeschält wird, also Flaking eintritt.

Dieses Modell beschreibt also vor allem das erste Stadium der Blisterbildung und liefert davon ausgehend dann eine Plausibilitätsbetrachtung des zweiten Stadiums. Riß- und Blisterbildung wurden theoretisch auch von Kamada et al. (1979) untersucht. Sie berechnen die Ausbreitung eines Risses unter der Probenoberfläche und die Ausdehnung der plastischen Zone an der Rißspitze. Dadurch erhalten sie Blisterdurchmesser  $d$  und Blisterdeckeldicken  $t$ , die in einem Zusammenhang von  $d \sim t^{1,1-1,25}$  stehen und damit den von Das et al. (1978) gemessenen Werten an Ni, Nb und V entsprechen.

(ii) Laterales Spannungsmodell (Abb. 5)

Bei der Implantation von Helium in Metallen beobachtet man, daß das beschossene Material senkrecht zur Oberfläche schwillt (z.B. St.-Jacques et al., 1980). Parallel zur Oberfläche wird dies durch das äußere unbeschossene Probenmaterial verhindert. Die Folge davon ist, daß sich laterale Spannungen aufbauen, die



$\bar{S}$  = integrale laterale Spannung

$\bar{P}$  = Kraftkomponente senkrecht zur Oberfläche

Abb. 5: Blisterbildung nach dem Spannungsmodell (s. Text)

von EerNisse und Picraux (1977) in Mo, Nb und Al gemessen wurden. Es stellte sich dabei heraus, daß die über die gesamte Implantationstiefe integrierte laterale Spannung mit der Fluenz wächst. Bei der kritischen Fluenz für Blisterbildung findet eine Reduktion der integralen lateralen Spannung statt. EerNisse und Picraux (1977) und parallel dazu Risch et al. (1977) haben die Theorie der elastischen Plassen auf die Blisterbildung angewendet. Während Risch et al. dabei nicht das erste Stadium betrachten, sondern von einer bereits losgelösten zylindrischen Platte ausgehen, aus der der spätere Blister geformt wird, geben EerNisse und Picraux eine qualitative Erklärung für den Ablösevorgang. Sie nehmen an, daß an Materialinhomogenitäten Spannungskonzentrationen auftreten, die den mechanischen Bruch im Bereich zwischen beschossenem und unbeschossenem Material bewirken.

Die durch das verhinderte laterale Schwellen aufgebaute integrale Spannung wirkt nun nach Risch et al. und EerNisse und Picraux als radiale kompressive Spannung auf den als zylindrische Platte angenommenen Entstehungsbereich eines Blisters. Zusätzlich nehmen sie an, daß senkrecht zur Oberfläche ein Druck wirkt, der für eine infinitesimale Auslenkung der Plattenmitte gegenüber dem festgehaltenen Plattenrand sorgt (Abb. 5), und daß die Gasmenge im Blister proportional zu dessen Fläche ist. Dann berechnen sie die Auslenkung eines Platten-volumelementes im Abstand  $r$  von der Zylinderachse mit dem Ergebnis, daß die Auslenkung bei  $r = 0$  im elastischen Fall unendlich wird, wenn gilt:

$$d = 3,8317 \sqrt{\frac{E}{12(1-\nu^2)S}} \cdot t^{3/2} \quad (17)$$

$d$  = Durchmesser der Platte

$E$  = Elastizitätsmodell

$\nu$  = Poisson-Konstante

$S$  = integrale laterale Spannung

$t$  = Plattendicke

Das radiale Biegemoment am Rand des Blisters wird -wie die Rechnungen zeigen- mit wachsendem Durchmesser immer größer. Dies bedeutet, daß plastische Verformung einsetzt oder die Zerreißgrenze überschritten und so das Blisterwachstum beendet wird.

Risch et al. betrachteten auch den Fall, für den  $S = 0$  ist, bzw. gegenüber dem Druck nicht wesentlich zur Auslenkung beiträgt. Dann zeigt sich, daß das radiale Biegemoment bei  $r = d$  von  $d$  unabhängig ist und dafür sorgt, daß sich der Blister immer mehr vergrößert, wenn die Arbeit zur Vergrößerung der Oberfläche kleiner ist als die Arbeit durch das Biegemoment bei  $r = d$ .

In diesem Fall erhalten sie ein fortwährendes Abschälen der beschossenen Fläche, das im Experiment durch Korngrenzen oder den Beschußfleckrand begrenzt wird.

#### b) Vergleich der Modelle mit dem Experiment

Die Beurteilung der Richtigkeit der beiden Modelle, was den Aufwölbungsvorgang angeht, ist nach wie vor strittig. Der funktionale Zusammenhang zwischen Blisterdeckeldurchmesser und Deckeldicke wird als ein Beurteilungskriterium dafür angesehen. Roth et al. (1975) haben an Niob gute Übereinstimmung mit der Proportionalität  $d \sim t^{3/2}$  für verschiedene Beschußenergien gefunden ( $d$  = häufigster Durchmesser). Das et al. (1978) fanden dagegen  $d \sim t^{1,22}$  für Niob und weitere Exponenten für verschiedene Materialien von 0,85 bis 1,25 (für Nickel  $d = 12,4 \cdot t^{1,15}$  mit  $t$  in  $\mu\text{m}$ ).

Die Beobachtung, daß bei niederen Beschußenergien (kleiner als etwa 20 keV) die Blisterdeckeldicke erheblich größer wird (Faktor 2-3) als die mittlere projizierte Reichweite der Heliumionen, scheint gegen das Gasdruckmodell zu sprechen; denn nach dem Gasdruckmodell sollte die Ribildung immer im Bereich der wahrscheinlichsten projizierten Reichweite (höchste Gaskonzentration) erfolgen. Tatsächlich hat diese Beobachtung erst auf das Spannungsmodell geführt (Behrisch et al., 1975a). Das Gasdruckmodell kann jedoch aufrecht

erhalten werden, wenn man annimmt, daß die vergrößerte Deckeldicke (im REM in  $\mu\text{m}$  gemessen) ein Ergebnis des strahlungsbedingten Volumenschwellens der Probe ist. Messungen des Schwellens des Beschußflecks bei 5 - 25 keV Heliumbeschuß auf Kupfer von St-Jacques et al. (1980) ergeben Werte, die diese Annahme unterstützen. Andererseits zeigen jedoch Rutherford-Rückstreuungen in doppelt ausgerichteter Anordnung an geblisterten Einkristall-Oberflächen (Roth 1974), wodurch die Dicken in oberflächenspezifischen Einheiten gemessen werden ( $\text{Atome}/\text{cm}^2$ ), daß die Deckeldicken  $t$  größer sind als die mittlere Heliumreichweite (in  $\text{Atomen}/\text{cm}^2$ ). Die Abrißstelle wird danach etwa durch die Tiefe bestimmt, für die gilt

$$t_{\text{RiB}} = \overline{R_p} + \Delta \overline{R_p}$$

mit  $\overline{R_p}$  = mittlere projizierte Reichweite

$\Delta \overline{R_p}$  = HWB der Reichweitenverteilung

(EerNisse und Picraux 1978).

$t_{\text{RiB}}$  liegt nach Risch (1978) näher an der gesamten Reichweite als an der mittleren.

Evans (1980) interpretiert jedoch die Ergebnisse der Rückstreuungen in doppelt ausgerichteter Anordnung damit, daß die beobachtete Breite des Blisterpeaks im Rückstreuspektrum durch den Blister selbst sowie eine desorientierte Zone unterhalb der Abrißstelle zustande kommt (Abb. 6). Hierbei ist jedoch zu bemerken, daß die fehlgeordnete Zone dann bis zu einer Tiefe der 3-fachen mittleren projizierten Reichweite reichen muß.



Abb. 6: Strukturveränderungen um einen Blister  
(nach Evans, 1980)

Ein Vorteil des Spannungsmodells liegt allerdings darin, daß man aus den Ergebnissen für Blisterbildung und Flaking vorhersagen kann, daß die Deckeldicken bei Flaking kleiner sein müssen als bei Blisterbildung, da hier der Gasdruck die treibende Kraft darstellt und daher etwa bei der mittleren projizierten Reichweite (größte lokale Gasmenge) die Abtrennung erfolgen sollte. Risch (1978) fand genau dieses Verhalten für den Beschuß von 100 keV He auf Niob.

Beim Vergleich der beiden Modelle muß berücksichtigt werden, daß die jeweils genauere Beschreibung für jeweils voneinander zu unterscheidende Prozesse gilt: Das Gasdruckmodell beschreibt den Mechanismus der Bildung eines Risses, das Spannungsmodell die Abschälung oder Aufwölbung der darüberliegenden Schicht. Nur innerhalb dieser jeweiligen Prozesse werden quantitative Beschreibungen geliefert. Dabei ist nicht geklärt, wie sich die in den Modellen verwendeten Materialkonstanten (Elastizitätsmodul, kritische Bruchspannung) für nichtimplantiertes Material durch den Beschuß verändern.

#### c) Erweiterte und zusätzliche Modelle

Wolfer (1980) hat daher ein Modell vorgeschlagen, in dem er die wirkenden Kräfte in der implantierten Schicht aufteilt in einerseits Mikrospannungen auf das Material zwischen den Blasen, und andererseits laterale Spannungen aufgrund des Schwellens. Die Mikrospannungen betrachtete er, ähnlich wie Evans, als Folge des Gasüberdruckes in den Blasen. Diese berechnet er mit Hilfe einer Hochdichte-Zustandsgleichung für Helium, die er der Theorie des flüssigen Heliums entnimmt. Für den Fall einerseits eines Blasengitters und andererseits beliebig verteilter Blasen und mit den Annahmen, daß alles Helium in Blasen sitzt und das Schwellen des Materials proportional der Heliumkonzentration ist, berechnet er kritische He-Konzentrationen für die Ribbildung. Für Nickel erhält er 20 - 40 % für Temperaturen von 700 K und 500 K, was in vernünftiger Übereinstimmung mit den Experimenten ist.

Die beobachteten hohen Schwellwerte durch Bestrahlung ( $\sim 30\%$ , St-Jacques 1980) vor dem Blistern können nicht durch elastische Kräfte kompensiert werden. Daher muß nach Wolfer die laterale Spannung einen Sättigungswert vor dem Blisterstadium aufgrund plastischen Fließens oder Bestrahlungskriechens erreichen. Der reaktionsbestimmende Prozeß für Blisterbildung ist danach dann die Bildung des Risses aufgrund der Mikrospannungen. Die Blister werden nach Wolfer dann durch die vorhandene laterale Spannung erzeugt, wenn die Bedingung  $d \sim t^{3/2}$  durch die Ausdehnung des Risses erfüllt ist. Der Exponent kann dabei vom Wert  $3/2$  abweichen, wenn berücksichtigt wird, daß der Riß nicht vollständig erfolgt ist, also noch Verbindungen zwischen dem späteren Blisterdeckel und dem darunter liegenden Material existieren. Dieses wird experimentell auch beobachtet (Blewer et al. 1972).

Umstritten an Wolfer's Modell ist die Annahme, daß alles Gas in den Blasen sitzt, wenn man dazu die in II.4 dargestellten Abschätzungen über die Heliumdichte in Gasblasen berücksichtigt.

Auch an diesem Modell ist nur das erste Stadium des Blisterprozesses quantitativ betrachtet und der Vorgang des Aufwölbens dann in mehr qualitativer Weise untersucht.

Zusätzliche Modellvorstellungen existieren von Martynenko (1979) sowie Baskes und Wilson (1978). Martynenko berechnet die Gitterspannungen durch Heliumimplantation und Strahlenschäden unter Berücksichtigung der Verschiebung der Heliumreichweiteverteilung relativ zur Verteilung der Gitterschädigung. Dies wird dadurch bewirkt, daß Helium mit einer Restenergie, die unterhalb der Schwellenergie für Gitterschädigungen liegt, noch etwas tiefer in den Kristall eindringen kann. Er zeigt, daß danach das Maximum der Gitterspannungen bei niederen Energien ( $\lesssim 40$  keV) in einer Tiefe  $t$  erreicht wird, die größer als die mittlere projizierte Reichweite der Ionen ist und bei höheren Energien ( $\gtrsim 40$  keV) in einer Tiefe liegt, die etwa gleich der mittleren Reichweite ist. Rißbildung kann jedoch nur erfolgen, wenn die maximale Spannung gleich der kritischen Reißspannung wird. Die Aussagen über kritische Fluenzen hängen hier wieder von dem Wert dieser Größe ab. Für den Aufwölbungsmechanismus trifft Martynenko keine klare Entscheidung. Er gibt an, daß gasgetriebene Blisterbildung bei höheren Energien wahrscheinlicher ist, da hier etwa im Maximum der Reichweiteverteilung die Rißbildung nach seinen Rechnungen erfolgt.

Ein anderes Modell von Baskes und Wilson (1978) ist eine statistische mathematische Untersuchung des Blasenwachstums mit Hilfe eines Rechners. Der Ausgangspunkt ist, daß sich Helium in Helium-Leerstellenkomplexen anordnet ( $\text{He}_n \text{V}_m$ , siehe II.4) und diese Komplexe innerhalb eines kritischen Radius mit weiteren Komplexen derart wechselwirken, daß sie sich in ihrem Schwerpunkt in kugelförmiger Geometrie vereinigen. Die Annahme dabei ist, daß dadurch die gesamte Energie der Konfiguration verkleinert wird. Durch statistisch verteiltes Hinzufügen weiterer Komplexe wachsen so Blasen heran. Nach den Berechnungen wachsen die größten Blasen von einer gewissen Konzentration an erheblich schneller. Dies wird als der Beginn der Blisterbildung betrachtet.

Allerdings weisen die experimentellen Ergebnisse nicht auf statistische verteilte Blasen und Blasengrößen hin, sondern auf die Bildung eines Blasengitters mit keinen deutlichen Größenunterschieden (Jäger und Roth 1980, Johnson und Mazey 1980).

Bisher ist es nicht gelungen, ein Modell zu erarbeiten, das alle experimentellen Beobachtungen widerspruchsfrei erklären kann.

## II.6. Reemission während der Implantation und Diffusion von Helium in Metallen

### a) Heliumreemission

Reemissionsmessungen während der Implantation von Heliumionen wurden u.a. von Bauer et al. (1973, 1974, 1976) bei einer Ionenenergie von 300 keV an Al, V, Mo, SS 316, von Wilson et al. (1976) bei 20 keV an Al, und von Erents und McCracken (1973) bei 36 keV an Mo durchgeführt.

Dabei zeigt sich, daß bis zu einer kritischen Fluenz die Reemission zunächst gering ( $< 10\%$  des auf die Probe geschossenen Teilchenstromes) aber konstant ist. Bei einer kritischen Fluenz setzt verstärkte Reemission ein, die zum Teil 100 % übersteigt. Die kritische Fluenz ist beschußtemperaturabhängig und sinkt mit steigender Temperatur. Bei Edelstahl (SS 316) und Aluminium finden Bauer et al. (1973, 1976) eine Korrelation zwischen der Zahl der Gasremissionsausbrüche und der Anzahl der von der Probe durch Flaking abgelösten Schichten. Dies und die Beobachtung von Blistern nach dem Beginn verstärkter

Reemission führte zu der Vermutung, daß die Veränderung der Oberflächenstruktur die Ursache für die Gasfreisetzung ist (Bauer et al. 1973, 1974, 1976). Allerdings beginnt nach Messungen von Behrisch et al. (1975b) bei Niob, das mit Niederenergie-Helium beschossen wird (1,5 bis 15 keV) zuerst verstärkte Reemission, und davon getrennt danach die Blisterbildung. Dieses Ergebnis finden auch Saidoh et al. (1981) für 200 keV Helium auf Molybdän und stehen damit im Gegensatz zu den Ergebnissen von Bauer et al. (1973). Eine Erklärung dafür ist bisher nicht gegeben worden.

#### b) Heliumdiffusion

Eine hohe Beweglichkeit des Heliums in Metallen - wenn es nicht an Leerstellen oder Komplexen gebunden ist - wurde bereits von Kornelsen (1972, 1974) festgestellt. Berechnungen zur Wanderung von Helium in Metallen wurden von Wilson und Johnson (1972) durchgeführt. Sie erhalten Wanderungsenergien für Helium in verschiedenen Metallen, als die Differenz der Bildungsenergien der beiden energetisch niedrigsten Helium-Zwischengitterkonfigurationen. Bis auf Palladium liegen diese Energien alle unter 1 eV (Ni 0.08 eV), jedoch muß berücksichtigt werden, daß es sich hier um die Differenz relativ großer Zahlen handelt (4-6 eV), so daß mögliche Unsicherheiten diese Differenz stark beeinflussen können.

Experimentelle Untersuchungen zur Diffusion von Helium in Nickel von Phillips (1980) bei 1250° C ergeben eine Aktivierungsenergie für durch Leerstellen gehinderte Zwischengitterdiffusion von 0,81 eV. Durch Entgasung von Proben, die durch den  $\beta$ -Zerfall von gelöstem Tritium mit Helium beladen wurden, und mit Hilfe der thermischen Desorptionsspektroskopie, schätzten Cost und Hickmann (1975) eine Wanderungsenergie zwischen 0,4 und 0,5 eV in Nickel, die sie als Aktivierungsenergie für Zwischengitterwanderung betrachten. Daß implantiertes Helium beim Erwärmen die Probe verläßt und nicht tiefer in das Gitter eindringt und sich dort gleichmäßig verteilt, stellten Blewer (1974) und Biersack et al. (1979) in Experimenten fest. Es zeigte sich, daß in Ca, Ni, Ag, Au, Pt das thermische Ausgasen nach monoenergetischer Implantation die Tiefenprofile nicht verbreitert, sondern nur verkleinert, Gas also aus allen Tiefenbereichen freige-

setzt wird, ohne an anderen Stellen aufgesammelt zu werden. Während Biersack dies als schnelle Zwischengitterwanderung betrachtet, vermutet Blewer die Freisetzung von Gas durch das Aufbrechen von Gasblasen an der Oberfläche.

Eine zusätzliche Möglichkeit schneller Wanderung besteht entlang von Versetzungen. De Hosson (1976) hat für Molybdän eine Wanderungsenergie von 0,3 - 0,4 eV entlang einer reinen Stufenversetzung angegeben. Obwohl Versetzungen als Senken für Helium wirken können, (Reed 1977), kann entlang der Versetzung Helium beweglich bleiben. Die gesamte an einer Versetzung angesammelte Gasmenge (Atmosphäre der Versetzung), kann durch die Bewegung der Versetzung aufgrund von Kräften, die auf den Kristall wirken; mitbewegt werden (Reed-Hill 1973). Dies kann ein Mechanismus zur Gasfreisetzung unter plastischer Verformung sein|

Das Verhalten von Helium-Leerstellenkomplexen bei Temperaturerhöhungen hat Reed (1977) zusammenfassend dargestellt und dafür folgende Möglichkeiten aufgezeigt:

1. Verlust von Helium
2. Verlust von Leerstellen
3. Wanderung des Komplexes zu einer Senke  
(z.B. freie Oberfläche)
4. Zusammenschluß mit anderen Komplexen.

Wilson und Bisson (1974) geben nach ihren Rechnungen für Helium in Kupfer zusätzlich die Möglichkeit an, daß ein Kupfer-Zwischengitteratom ein Heliumatom, das in einer einfach besetzten Leerstelle sitzt, in das Zwischengitter verdrängen kann. Nach den Bildungsenergien für Helium in verschiedenen Metallen von Wilson und Johnson (1972) ist die Differenz der Bildungsenergien zwischen Helium im Zwischengitter und Helium in einer Leerstelle (gegenüber einer bereits vorhandenen Leerstelle) kleiner für Kupfer und Nickel, als die Energie, die durch Rekombination eines Matrixzwischengitteratoms und einer Leerstelle frei wird. Allerdings ist aufgrund von Messungen von Thomas et al.(1981) und Rechnungen von Bisson et al.(1980) auch umgekehrt der Fall möglich, daß He-Zwischengitterkomplexe in Ni und Edelstahl Gitteratome verdrängen

und eine He-gefüllte Leerstelle bilden. Caspers et al. (1974) haben für  $\text{He}_n\text{V}_m$  Komplexe in Wolfram die Dissoziations- und Wanderungsenergien berechnet bis  $n = m = 3$ . Dabei zeigte sich ein Trend, nach dem für die Komplexe mit  $m = 2$  und  $m = 3$  die Aktivierungsenergie für Wanderung mit zunehmender Heliumzahl zunimmt und der Verlust von Leerstellen weniger wahrscheinlich wird. Die Aktivierungsenergien gehen dabei von 0,29 eV für die Wanderung des Heliumatoms bis zu großen 5 eV für die Komplexe  $\text{He}_n\text{V}$  für  $n = 1, 2, 3, 4$ . Für  $n = 2, 3, 4$  sind die Dissoziationsenergien kleiner, so daß hier die Komplexe zuerst zerfallen werden.

Aufgrund der Vielfalt der Reaktionsmöglichkeiten zwischen Helium und Defekten ist es experimentell schwer, Messungen durchzuführen, die eindeutige Aussagen über den Wanderungsmechanismus zulassen.

### c) Diffusion von Blasen

Bei großen Heliumkomplexen allerdings, wie bei Blasen, kann die Bewegung direkt im TEM beobachtet werden. Barnes und Mazey (1963) stellten Blasenwanderung in Kupferfolien bei 800° C fest, sowie Blasenkoaleszenz dann, wenn zwei Blasen aufeinandertreffen. Bemerkenswert ist dabei das Ergebnis, daß die Gasblasen nur weiterwachsen, wenn sie sich zusammenlagern; eine Verkleinerung wird nicht beobachtet. Gasblasen verlieren Helium danach nur dann, wenn sie die Oberfläche schneiden. Helium wird aber nicht in das Gitter abgegeben. Dies erscheint in Anbetracht der verschwindenden Löslichkeit (s. z.B. von den Oriesch 1980) von Helium in Metallen auch plausibel.

Der Diffusionsprozeß wird nach Barnes und Mazey (1963) durch die Oberflächendiffusion von Metallatomen am Blasenrand bewirkt. Berechnungen der Blasengröße und Blasenkoaleszenz (der Blasenwanderungszeit, bis Koaleszenz stattfindet) von Speight (1964) bei isothermer Temperierung, ergeben Aktivierungsenergie für die Wanderung von Gasblasen zwischen 2/7 und 2/5 der Aktivierungsenergie für Oberflächendiffusion, abhängig von dem Bruchteil von Blasen, der an Versetzungen sitzt. Nach Speight wachsen Blasen ebenfalls aufgrund von Wanderung und Koaleszenz. Nach Lidiard et al. (1968) werden

zwischen Gasblasen kurzreichweitige Anziehungskräfte ( $\sim 1/l^7$ ,  $l$  = Blasenabstand), wodurch Koaleszenz bei geringen Blasenabständen erfolgen kann. Willertz und Shewmon (1970) sowie später Chen und Cost (1974) stellten durch Messungen erheblich geringere Diffusion von Blasen in Gold, Kupfer und Aluminium (bis zu  $10^{-6}$  mal kleiner in Gold) fest, als aufgrund von Oberflächendiffusion vorhergesagt wird. Nach Willertz und Shewmon (1970) ist die Bildung von Keimen (Leerstelle bzw. zusätzliches Oberflächenatom) auf den facettierten Flächen der Blasen für die Bildung neuer facettierter Flächen der wanderungsbestimmende Prozeß. Chen und Cost verglichen ihre Ergebnisse mit Simulationsrechnungen für Blasendiffusion und bestätigten diesen Mechanismus.

Die Bewegung von Heliumblasen bei hohen Temperaturen ( $> 500^\circ \text{C}$ ) wurde in einzelnen Fällen auch von Jäger und Roth (1980) bei der TEM-Untersuchung implantierter Proben festgestellt. Die Wanderung verlief dabei über eine Strecke, die in etwa dem Durchmesser der Blasen bei dieser Temperatur entsprach (30 - 40 nm). In TEM-Beobachtung von Blasenstrukturen bei Zimmertemperatur konnten bisher Blasenbewegungen nicht entdeckt werden. Das läßt darauf schließen, daß mögliche Spannungsgradienten in der implantierten Schicht (Eernisse et al. 1977) Heliumblasen bei Zimmertemperatur nicht bewegen.

### III. Experimentelle Methoden

#### II.1 Heliumpartialdruckmessung

Die Gasemissionsrate während des Ionenbeschusses und bei der thermischen Desorption wird über den Heliumpartialdruck bestimmt. In einem Volumen  $V$ , in das Gas mit der Emissionsrate  $R(t)$  einströmt und mit der Sauggeschwindigkeit  $L$  (l/s) abgesaugt wird, gilt unter Vernachlässigung von Readsorption für den Partialdruck des betrachteten Gases  $p^X$  die Gleichung

$$\frac{dp^X}{dt} + \frac{p^X}{\tau} = C \cdot R(t) \quad (18)$$

mit der Zeitkonstanten  $\tau = V/L$

und  $C = \frac{kT}{V}$   $k$  = Boltzmannkonstante  
 $T$  = Absolute Temperatur

Der Partialdruck  $p^X$  ergibt sich aus dem um den Untergrunddruck bei  $R(t) = 0$  verminderten Gesamtpartialdruck. Nach Gleichung (18) können zwei Grenzfälle für die Messung betrachtet werden:

a) kleine Zeitkonstante ( $\tau \rightarrow 0$ ), d.h. große Sauggeschwindigkeit ( $L \rightarrow \infty$ ).

Daraus folgt  $\frac{dp^X}{dt} \ll \frac{p^X}{\tau}$

und  $\frac{p^X}{\tau} \simeq C \cdot R(t) \quad (19)$

d.h.  $p^X$  ist proportional zur Emissionsrate  $R(t)$ .

b) sehr große Zeitkonstanten ( $\tau \rightarrow \infty$ ), kleine Sauggeschwindigkeit ( $L \rightarrow 0$ )

Daraus folgt

$$\frac{dp^X}{dt} \gg \frac{p^X}{\tau}$$

und  $\frac{dp^X}{dt} \simeq C \cdot R(t)$  bzw.  $p^X(t) \simeq C \cdot \int_0^t R(t') dt' \quad (20)$

d.h.  $p^X$  ist proportional dem Integral von  $R(t)$  über die Zeit. Im allgemeinen läßt sich  $R(t)$  für Fall a) einfacher bestimmen, d.h. die

Zeitkonstante sollte so klein wie möglich gehalten werden. Andererseits wird der Partialdruck  $p^X$  um so kleiner, je größer die Sauggeschwindigkeit  $L$  ist. Für  $R'(t) = \text{const} = R'$  gilt aus (18):

$$p^X = \frac{k \cdot T}{L} (1 - e^{-t/\tau}) R' \quad (21)$$

für  $t \rightarrow \infty$

$$p_\infty^X = \frac{k \cdot T}{L} \cdot R' \quad (22)$$

Damit sich also für hinreichend kleines  $L$  eine genügend kleine Zeitkonstante  $\tau$  ergibt, muß das Volumen  $V$  des Meßraumes klein gehalten werden. Der kleinste erreichbare Wert für  $L$  ist durch die notwendigen Öffnungen im Meßvolumen, z.B. Strahl- und Detektoröffnungen, begrenzt.

### III.1.1 Messung des Gasremissionskoeffizienten

Der Gasremissionskoeffizient  $\left( \frac{\dot{N}_{\text{Reem}}}{\dot{N}_{\text{ein}}} \right)$

$\dot{N}_{\text{Reem}}$  = Anzahl der Teilchen pro Zeiteinheit, die von der Probe während des Beschusses reemittiert werden,

$\dot{N}_{\text{ein}}$  = Anzahl der Teilchen pro Zeiteinheit, die auf die Probe treffen

ist eine Funktion der Fluenz. Es ist daher für die Messung wichtig, daß eine homogene Stromdichteverteilung des Primärionenstrahls  $J_{\text{He}}^+$  auf den Beschußfleck erreicht wird. Dabei ist es vorteilhaft, wenn  $J_{\text{He}}^+$  zeitlich konstant ist. Da bei Experimenten mit Ionenstrahlen diese zeitliche Konstanz nicht vollkommen verwirklicht werden kann, wird der Reemissionskoeffizient nach folgender Methode gemessen.

Der Heliumpartialdruck  $P$  im Meßvolumen setzt sich zusammen aus:

$$P = p^X + p_u \quad (23)$$

mit

$$p^X = C^* \dot{N}_{\text{Reem}} \quad (24)$$

$p_u$  = Partialdruck aufgrund des Untergrundes,

$$C^* = \frac{k \cdot T \cdot \tau}{V}$$

$k$  = Boltzmannkonstante

$T$  = Abs. Temperatur.

Mit Hilfe des Massenspektrometers erhält man einen zu P proportionalen Partialionenstrom  $J_p$ :

$$J_p = C' \cdot p \quad (25)$$

Gemessen wird nun die über ein bestimmtes Zeitintervall  $\Delta t$  durch den Partialionenstrom  $J_p$  geflossene Ladung  $Q_y$ , für die gilt:

$$Q_y = \int_{t_1}^{t_1+\Delta t} J_p(t) dt \rightarrow Q_y = \bar{J}_p \cdot \Delta t \quad (26)$$

$\bar{J}_p$  = mittlerer Partialionenstrom in  $\Delta t$ .

Dabei ist  $\Delta t$  vorgegeben durch die Zeit, die der primäre Ionenstrom  $J_{He}^+$  benötigt, um eine fest vorgegebene Ladung  $Q_x$  aufzusammeln.

$$\Delta t = \frac{Q_x}{\bar{J}_{He}^+}$$

$\bar{J}_{He}^+$  = mittlerer primärer Ionenstrom in  $\Delta t$ ,

d.h. für die Mittelwerte gilt: (mit  $\bar{J}_p = \bar{J}_p + \bar{J}_{pu}$ )

$$Q_y = \frac{\bar{J}_p \cdot Q_x}{\bar{J}_{He}^+} = Q_x \frac{\bar{J}_p + \bar{J}_{pu}}{\bar{J}_{He}^+} \quad (27)$$

Wenn  $\bar{J}_p \gg \bar{J}_{pu}$ , dann erhält man aus (27) sofort den Gasreemissionskoeffizienten, mit (24), (25):

$$\frac{Q_y}{Q_x} = \frac{C' \cdot C^* \cdot \dot{N}_{Reem}}{e \cdot \dot{N}_{ein}} \rightarrow \frac{\dot{N}_{Reem}}{\dot{N}_{ein}} = \left[ \frac{C' \cdot C^*}{e} \right]^{-1} \frac{Q_y}{Q_x} = C'' \cdot Q_y \quad (28)$$

Kann man  $\bar{J}_{pu}$  nicht vernachlässigen, so gilt mit  $Q_{yu} = \Delta t \cdot \bar{J}_{pu}$

$$\frac{\dot{N}_{Reem}}{\dot{N}_{ein}} = \left[ \frac{C' \cdot C^*}{e} \right]^{-1} \frac{Q_y - Q_{yu}}{Q_x} \quad (29)$$

$e$  = Elementarladung.

Der Partialionenstrom  $\overline{J_{px}}$  ist abhängig von der physikalischen Wechselwirkung (f) zwischen Helium und Metall sowie von der primären Ionenstromstärke  $\overline{J_{He^+}}$ .

$$\overline{J_{px}} = f \cdot \overline{J_{He^+}} \quad (30)$$

Wenn  $\overline{J_{pu}}$  gegenüber  $\overline{J_{px}}$  vernachlässigt werden kann, dann folgt mit (27) und (30), daß  $Q_y$  unabhängig von  $\overline{J_{He^+}}$  und somit nur noch von f abhängt. Andernfalls gilt für eine Änderung von  $Q_y$  durch eine Änderung von  $\overline{J_{He^+}}$  (in Zeiten, die groß gegen  $\Delta t$  sind) mit (27) und (30)

$$Q_y = Q_x \frac{f \cdot \overline{J_{He^+}} + \overline{J_{pu}}}{\overline{J_{He^+}}} = Q_x \frac{\overline{J_p}}{\overline{J_{He^+}}} \quad (31)$$

Daraus folgt für  $\frac{dQ_y}{Q_y}$ : ( $\overline{J_{pu}} = \text{const}$ )

$$\frac{dQ_y}{Q_y} = - \frac{\overline{J_{pu}}}{\overline{J_p}} \cdot \frac{d \overline{J_{He^+}}}{\overline{J_{He^+}}} \quad (32)$$

d.h. eine relative Änderung des Primärionenstroms  $\frac{d \overline{J_{He^+}}}{\overline{J_{He^+}}}$  bewirkt eine um den Faktor  $\frac{\overline{J_{pu}}}{\overline{J_p}}$  kleinere Veränderung von  $\frac{dQ_y}{Q_y}$  mit umgekehrtem Vorzeichen: Vergrößerung des Primärstroms führt zu einer Verringerung von  $Q_y$ ; d.h. im gemessenen Gasreemissionskoeffizienten werden, wenn  $\overline{J_{px}}$  groß gegen  $\overline{J_{pu}}$  ist, Schwankungen in  $\overline{J_{He^+}}$  nur "gedämpft" bemerkbar.

### III.1.2 Messung der thermischen Gasdesorption

Zur Untersuchung der Bindungsverhältnisse implantierten Heliums in Festkörpern wie auch der Diffusion von Helium kann die Methode der thermischen Desorptions-Spektrometrie (TDS) verwendet werden. Bei der Analyse dieser Spektren ist es wichtig zu wissen, welche Prozesse den Freisetzungsmechanismus bestimmen. Dazu kann man aus der Veränderung der Spektren durch Änderung der Randbedingungen (Implantationsenergie, Temperaturgeschwindigkeit ...) Hinweise erhalten.

a) Einsprung-bestimmte Freisetzungsprozesse

Die durch Einsprungprozesse bestimmte Desorptionsrate  $R(t)$  einer Teilchensorte kann durch folgende Desorptionsgleichung dargestellt werden (Redhead 1962, Carter 1962):

$$R(t) = - \frac{dn}{dt} = n^r \cdot v_r \cdot e^{-E/kT} \quad (33)$$

mit  $n$  = Oberflächenbedeckung (Teilchen/cm<sup>2</sup>)

$r$  = Ordnung der Desorption

$r = 1$  z.B. atomar gebundene Teilchen verlassen  
atomar den Adsorber

$r = 2$  z.B. atomar gebundene Teilchen desorbieren nach  
zweiatomiger Molekülbildung

$v_r$  = Desorptionskonstante

für  $r = 1$  Frequenzfaktor

$E$  = Aktivierungsenergie für Desorption

$k$  = Boltzmannkonstante.

$T$  = Temperatur in K

Erwärmt man die mit Helium beladene Probe linear mit der Zeit ( $t$ ),

$$T = T_0 + \beta t$$

$T_0$  = Anfangstemperatur

$\beta$  = Temperaturgeschwindigkeit

so erhält man - abhängig von den Bindungsverhältnissen - ein Spektrum von Desorptionsmaxima. Für die Temperatur  $T_m$ , bei der die Desorptionsrate ein Maximum erreicht, läßt sich nach Redhead (1962) die Aktivierungsenergie berechnen. Man erhält danach:

für  $r = 1$

$$E = k \cdot T_m \ln \left( \frac{k \cdot T_m^2 \cdot v_1}{\beta \cdot E} \right) \quad (34)$$

für  $r = 2$

$$E = k \cdot T_m \ln \left( \frac{k \cdot T_m^2 \cdot v_2 \cdot n_0}{\beta \cdot E} \right) \quad (35)$$

(Voraussetzung:  $E$  unabhängig von  $n$ ,  $n_0$  = Anfangskonzentration zur Zeit  $t = 0$ ).

Ist  $v_r$  bekannt, so kann man  $E$  aus einer Desorptionsmessung berechnen. Kennt man  $v_r$  nicht, so kann durch eine zweite Messung mit einem veränderten  $\beta$  (Unterschied größer als zwei Größenordnungen)  $E$  und  $v_r$  graphisch ermittelt werden (Redhead 1962). Die Ordnung der Reaktion läßt sich an der Abhängigkeit von  $T_m$  von  $n_0$  feststellen. Für Reaktionen 1. Ordnung ist  $T_m$  unabhängig von  $n_0$ .

Van Gorkum (1980) gibt eine Methode an, nach der es möglich ist, aus der Form einer Desorptionskurve  $E$  und  $v_r$  zu berechnen. Dazu ist es jedoch erforderlich, daß sich nicht mehrere Desorptionsstufen überlappen oder andere Effekte - wie z.B. Diffusion - die Form der Kurve verändern. Im wesentlichen besteht die Methode darin, daß eine experimentelle Desorptionskurve mit einer normierten theoretischen Desorptionskurve verglichen wird, die für einen großen Bereich von Aktivierungsenergien ( $20 \lesssim E/kT_m \lesssim 40$ ) praktisch unabhängig von  $E$  ist und nur von der Desorptionsordnung  $r$  abhängt. Die theoretische Kurve ist dabei über eine von van Gorkum eingeführte Variable  $\psi_j$  von der Temperatur abhängig, die für  $r = 1, r = 2$  tabelliert ist. Jeder Punkt der experimentellen Kurve kann so mit einem Wert für  $\psi_j$  identifiziert werden.

Es gilt:

$$E/kT_j = \ln \left( \frac{T_j^2}{\psi_j} \right) + \ln \left( \frac{n_0^{r-1} v_r \cdot k \cdot g(E/kT_j)}{\beta E} \right), \quad g(E/kT_j) \approx \text{const}$$

für  $20 \leq E/kT_j \leq 40$  (36)

Trägt man für jeden Punkt der experimentellen Kurve mit der Temperatur  $T_j$ ,  $1/T_j$  als Funktion von  $\ln(T_j^2/\psi_j)$  auf, so erhält man bei richtiger Wahl der Reaktionsordnung eine Gerade, aus der man  $E$  und  $v_r$  berechnen kann.

#### b) Diffusionsbestimmte Freisetzungsprozesse

Farrell und Carter (1966) haben mit Hilfe des 2. Fick'schen Gesetzes und der Temperaturabhängigkeit der Diffusionskonstanten ( $D = D_0 e^{-E/kT}$ ) für lineare Temperaturerhöhung die Desorptionsrate aus dem Teilchenfluß aus der Oberfläche ( $\sim dc/dx(\text{Oberfläche})$ ) be-

rechnet, unter der Voraussetzung, daß keine Wechselwirkung der diffundierenden Teilchen stattfindet.

Für eine ebene Anfangsverteilung in der Tiefe  $x = p \cdot \lambda$  ( $P$  = ganzzahliger Faktor,  $\lambda$  = Gitterkonstante) erhalten sie Gleichung (30) mit  $\beta$  ersetzt durch  $\beta \cdot p^2$ . Bei konstantem  $E$  verschiebt sich  $T_m$  für größeres  $p$  zu höheren Werten:

$$E = k \cdot T_m \cdot \ln \left( \frac{k \cdot T_m^2 \cdot v}{p^2 \cdot \beta \cdot E} \right) \quad (37)$$

Für eine breitere Anfangskonzentration fanden Kelly and Matzke (1966), daß die berechneten Aktivierungsenergien sich von den nach der Farrell- und Carter-Methode ermittelten nur um 3 % unterscheiden, wenn man  $p$  als die Tiefe nimmt, für die gilt:

$$\frac{\int_0^p \rho(p) dp}{\int_0^\infty \rho(p) dp} = 0,5$$

$\rho(p)$  = Konzentration in der Tiefe  $P$ .

Die Desorptionsspektren verbreitern sich bei diffusionsbestimmter Desorption gegenüber Ein-Sprung-bestimmter Freisetzung (Farrell et al. 1966). Die Aktivierungsenergie für Diffusion mit Wiedereinfang an nicht sättigenden Aufsammlzentren berechnet Donnelly et al. (1976). Sie erhalten:

$$E = k \cdot T_m \cdot \ln \left( \frac{k \cdot T_m^2 \cdot v \cdot \left( 1 + \left( 1 + \frac{4p^2}{L^2} \right)^{1/2} \right)}{2 p^2 \cdot \beta \cdot E} \right) \quad (38)$$

$L$  = Sprungweite zwischen zwei Aufsammlzentren  
für  $L \rightarrow \infty$ : (38)  $\rightarrow$  (37).

### c) Einfluß der Apparatur auf die Form der Desorptionsspektren

Da in Experimenten die Zeitkonstante der Apparatur endlich und größer als null ist, entspricht der Verlauf der gemessenen Druckänderung  $P(t)$  bzw.  $P(T)$  nicht genau dem Verlauf der Desorptionsrate  $R(t)$  bzw.  $R(T)$ . Es ergibt sich eine Verzerrung und Verschiebung des gemessenen Spektrums. Edwards (1976) und Webb et al. (1977) haben dies theoretisch untersucht. Edwards erhält für die Desorption erster und zweiter Ordnung eine Beziehung zwischen den Größen  $\beta \tau / \Delta W$  und  $\Delta T / \Delta W$  mit

$\Delta W$  = Halbwertsbreite des Desorptionsmaximums

$$\Delta T = T_p - T_m$$

wobei  $T_p$  die Temperatur des Maximums im Spektrum ist  
und  $T_m$  die Temperatur für  $R(t) = \text{maximal}$ .

Kleine Verzerrungen zusammen mit nicht zu kleinen Signal/Untergrundverhältnissen ( $\tau \sim 1/L$ ) sind danach für

$$\beta \cdot \tau / \Delta W \approx 0.1$$

zu erreichen, wobei dann gilt

$$\beta \cdot \tau / \Delta W \approx \Delta T / \Delta W$$

Für die in dieser Arbeit geschilderten Desorptionsexperimente ergibt sich mit  $\tau = 1,6 \text{ s}$  und  $\beta = 7^\circ/\text{s}$  ein  $\Delta T$  zu 8 Grad.

Nach Webb et al. (1977) ergeben sich aufgrund der Zeitkonstante die größten Veränderungen auf der abfallenden Flanke (Hochtemperaturseite) des Desorptionsmaximums in Form einer Verbreiterung.

### III.2 Messung der Oberflächenveränderung der Proben

Um die Korrelation zwischen Gasreemission und Blisterbildung während der Implantation zu untersuchen, muß eine Methode gefunden werden, die die Veränderung der Oberfläche der Probe während des Beschusses registriert. Eine direkte Beobachtung im Rasterelektronenmikroskop während der Implantation, wie sie teilweise von anderen Autoren durchgeführt wurde, war in der vorliegenden Arbeit

nicht möglich. Daher wurde eine Methode gewählt, die bereits Johnson und Armstrong (1978) für die Beobachtung der Oberflächenentwicklung bei Implantation verwendet hatten. Dazu wird ein Laserstrahl (He-Ne) auf den Beschußfleck gerichtet. Da die Probenoberfläche poliert ist, erfolgt zunächst spiegelnde Reflexion. Mit dem Beginn des Blisterns wird ein größerer Teil der Laserintensität in andere Richtungen gestreut. Mit einem Photoelement, das außerhalb der Richtung für spiegelnde Reflexion angebracht ist, kann man dann diese Intensitätszunahme des gestreuten Lichtes messen.

Abbildung 7 zeigt, daß der gemessene Photostrom etwa proportional der Anzahl der Blister ist. (Die Blisteranzahl wurde durch Abzählung auf Photoaufnahmen an drei verschiedenen Stellen des Beschußflecks und Extrapolation auf den gesamten Beschußfleck ermittelt.)

Da der Laser eine kohärente Lichtquelle darstellt, ergibt die Streuung an rauen Oberflächen ein kompliziertes, unregelmäßiges Interferenzbild mit großen Kontrasten (Welfold 1980).

Es wurde bei den hier beschriebenen Messungen aus dem Streulichtprofil und der Intensitätsverteilung nicht die mittlere Stufenhöhe auf der Probe ermittelt.

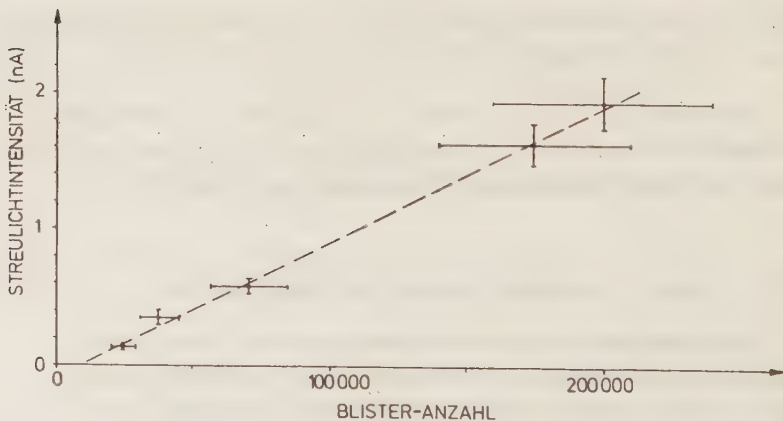


Abb. 7: Proportionalität des Laserstreulichtsignals mit der Anzahl der Blister

### III.3 Messung der Heliumtieftiefenprofile

Die Bestimmung der Konzentrationsverteilung des implantierten Heliums wurde mit Hilfe der Kernreaktion  ${}^3\text{He}(d,\alpha)\text{H}$  vorgenommen (Langley 1976, Scherzer et.al. (1978). Diese Methode hat den Vorteil, daß die Probenoberfläche nicht zerstört wird, wie etwa bei der Tiefenprofilbestimmung durch Zerstäubung und gleichzeitige Massenanalyse (SIMS). Außerdem erfolgt die Messung praktisch untergrundfrei, da die nachzuweisenden  $\alpha$ -Teilchen eine sehr viel größere Energie haben ( $\sim 3$  MeV) als die gestreuten Primärionen ( $E_0 = 500$  keV). Der Wirkungsquerschnitt dieser Reaktion ist bis auf etwa 10 % bekannt (Yarnell et al. 1952) und besitzt bei einer Deuteronenenergie (im Laborsystem) von etwa 450 keV ein Maximum. Der Q-Wert beträgt 18,35 MeV. Abbildung 8 zeigt schematisch die Teilchenwege für die Ermittlung der Tiefenprofile von implantiertem Helium im Festkörper:

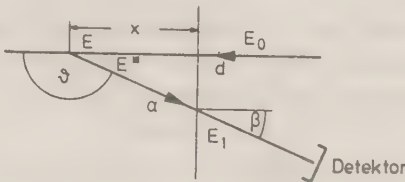


Abb.8: Teilchenwege bei der He-Tiefenprofilbestimmung

Ein Deuteron dringt in die implantierte Probe mit einer Anfangsenergie  $E_0$  (500 keV) ein und verliert im wesentlichen aufgrund des elektronischen Energieverlustes längs seines Weges Energie, bis es auf ein  ${}^3\text{He}$ -Atom trifft, aus der Probe gestreut wird oder zur Ruhe kommt. Ist  $E$  die Deuteronenenergie kurz vor der Reaktion mit einem  ${}^3\text{He}$ -atom, dann gilt - wenn man einen mittleren Energieverlust pro Weglänge  $dE/dx$  auf der Wegstrecke  $x$  als konstant annimmt:

$$E(x) = E_0 - \frac{dE}{dx} x \quad (39)$$

Die Energie  $E^*$  für das  $\alpha$ -Teilchen nach der Kernreaktion steht mittels der Kernreaktionskinematik in Zusammenhang mit  $E(x)$  durch:

$$E^*(x) = \frac{M_p}{M_p + M_\alpha} Q + \left( \frac{E}{M_p + M_\alpha} \right)^2 f \quad (40)$$

mit  $M_p$  = Masse des in der Reaktion entstehenden Protons  
 $M_\alpha$  = Masse des in der Reaktion entstehenden  $\alpha$ -Teilchens  
 $f$  = Faktor der von  $Q$ ,  $E$ , Streuwinkel und den Massen der beteiligten Teilchen abhängt.

Tritt das  $\alpha$ -Teilchen dann aus der Probe unter einem Winkel  $\beta$  aus, dann gilt wegen des Energieverlustes:  $dE^*/dx$  (hier wieder als konstant angenommen)

$$E_1(x) = E^*(x) - \frac{dE^*}{dx} \cdot \frac{x}{\cos \beta} \quad (41)$$

Der Zusammenhang zwischen  $E_1$  und  $E_0$  ist damit:

$$E_1(x) = \frac{M_p}{M_p + M_\alpha} Q + \frac{E_0 - dE/dx \cdot x}{(M_p + M_\alpha)^2} f(E) - \frac{dE^*}{dx} \frac{x}{\cos \beta} \quad (42)$$

Die unter dem Winkel  $\beta$  in einem Detektor nachgewiesenen  $\alpha$ -Teilchen haben also eine tiefenabhängige Energie. Damit läßt sich über die gemessene Energieverteilung die Tiefenverteilung des implantierten  $^3\text{He}$  berechnen.

Mit der Kernreaktion erhält man nach Beschuß mit einer Anzahl von Deuteronen  $N_D$  eine Anzahl  $H_\alpha$  von  $\alpha$ -Teilchen im Detektor, die aus einer Tiefe  $x$  mit Tiefenintervall  $\Delta x$  stammen:

$$H_\alpha(x) = \rho_{^3\text{He}}(x) \cdot \Delta x \cdot N_D \cdot \Delta\Omega \frac{d\sigma}{d\Omega}/k \quad (43)$$

$\rho_{^3\text{He}}(x)$  = Volumenkonzentration des implantierten Heliums in der Tiefe  $x$

$\frac{d\sigma}{d\Omega}/k$  = differentieller Wirkungsquerschnitt für die Kernreaktion im Laborsystem

$\Delta\Omega$  = Raumwinkel des Detektors.

Im  $\alpha$ -Spektrum kann nun jedem Energieintervall ein Tiefenintervall zugeordnet werden, denn es gilt:

$$-\frac{dE_1}{dx} = -x \cdot \frac{dE}{dx} - \frac{\frac{dE^*}{dx}}{\cos \beta} = [S_k] \quad (44)$$

$$\text{mit } x = - \frac{f}{(M_p + M_\alpha)^2} + \frac{E_0 - \frac{dE}{dx} x}{(M_p + M_\alpha)^2} \frac{df}{dE}$$

Für (44) kann man schreiben, wenn  $\Delta x$  hinreichend klein ist:

$$\frac{\Delta E_1}{\Delta x} = [S_k] ;$$

Mit (43) folgt dann für die Heliumkonzentration  $\rho_{3\text{He}}$  um ein Intervall  $\Delta x$ , in der Tiefe  $x$

$$\rho_{3\text{He}}(x) = \frac{H_\alpha(x) [S_k]}{N_D \cdot \Delta\Omega \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} / k \cdot \Delta E_1} \quad (45)$$

Um das Problem einer Messung von  $N_D$  und  $\Delta\Omega$  zu umgehen, kann man  $\rho_{3\text{He}}$  relativ zur Volumenkonzentration der Gitteratome  $\rho_g$  angeben.

Für die rückgestreuten Deuteronen, die gleichzeitig mit dem  $\alpha$ -Spektrum gemessen werden, gilt:

$$\rho_g(x) = \frac{H_R(x)}{N_D \cdot \Delta\Omega \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} / r \cdot \Delta x} \quad (46)$$

$H_R(x)$  = Anzahl der rückgestreuten Deuteronen aus  
Intervall  $\Delta x$  um die Tiefe  $x$

$\frac{d\sigma}{d\Omega} / r$  = Rutherford-Wirkungsquerschnitt

Für die Energie  $E'$  der rückgestreuten und im Detektor nachgewiesenen Deuteronen gilt eine ähnliche Beziehung wie (44):

$$\frac{dE'_1}{dx} = -k \frac{dE}{dx} - \frac{x \frac{dE'}{dx}}{\cos \beta} = [S_R] \quad (47)$$

$K$  = kinematischer Rückstoßfaktor bei elastischen Stößen

$\frac{dE}{dx}$  = mittlerer Energieverlust des einlaufenden Deuterons

$\frac{dE'_1}{dx}$  = mittlerer Energieverlust des rückgestreuten Deuterons.

Betrachtet man nun die Höhe der Rückstreukante  $H_R(0)$ , die dadurch entsteht, daß von der Oberfläche und einer infinitesimalen Tiefe  $\Delta x$  Teilchen rückgestreut werden, so gilt:

$$\rho_{\text{gitter}}(0) = \frac{H_R(0) [S_R]}{N_D \cdot \Delta\Omega \frac{d\sigma}{d\Omega} / R \cdot \Delta E_1} \quad (48)$$

Mit  $\Delta E_1 = \Delta E'_1$  bildet man aus (46) und (48) das Verhältnis

$$\frac{\rho_{\text{He}}^{(x)}}{\rho_{\text{gitter}}(0)} = \frac{H_\alpha(x)}{H_R(0)} \frac{\frac{d\sigma}{d\Omega}/R}{\frac{d\sigma}{d\Omega}/k} \cdot \frac{[S_R]}{[S_K]} \quad (49)$$

Damit kann man relative Konzentrationen messen, ohne die geschossene Teilchenzahl und den Detektorraumwinkel zu kennen.

Die gemessenen  $\alpha$ -Spektren (Abb. 9) wurden ähnlich wie nach Gl. (49) von dem Rechnerprogramm LORI (Scherzer, et al. 1978) ausgewertet. Dabei wurde zusätzlich berücksichtigt, daß  $dE/dx$  und  $dE^*/dx$  sich längs des Weges der Teilchen ändern und auch  $d\sigma/d\Omega/k$  abhängig ist von der Energie  $E$  und damit von der Tiefe.

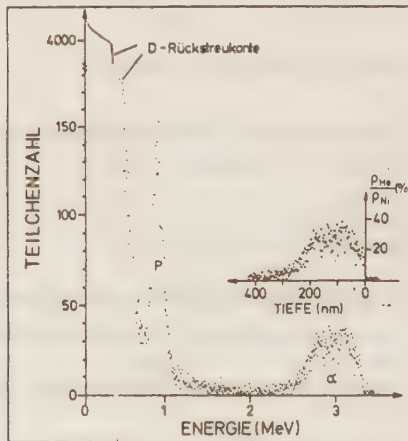


Abb. 9: Spektrum der Teilchen, die aus der Kernreaktion  $^3\text{He}(d,\alpha)\text{H}$  in den  $\alpha$ -Detektor gelangen, und zugeordnetes He-Tiefenprofil

Neben den  $\alpha$ -Teilchen und den rückgestreuten Deuteronen werden im Detektor auch von Kernreaktionen Protonen nachgewiesen, die unter dem Winkel  $\beta$  die Probe verlassen. Da sie nur einen Teil ihrer Energie ( $\sim 14$  MeV) im Detektor verlieren (Dicke der Verarmungszone im Detektor  $\sim 100 \mu\text{m}$ , Reichweite der 14 MeV Protonen im Si  $\sim 1 \text{ mm}$  (Andersen et al. 1977), werden sie bei scheinbar kleineren Energien im Spektrum aufgesammelt.

#### III.4 Mikroskopische Oberflächenuntersuchungen

Beschossene Proben wurden im Lichtmikroskop (LM) sowie im Rasterelektronenmikroskop (REM) des Instituts Dr. Klingele (1980) untersucht. Für zwei Proben wurden von Herrn Dr. Jäger in der KFA Jülich Transmissionselektronenmikroskop-(TEM)-Aufnahmen angefertigt.

#### IV. Experimentelle Apparatur und Durchführung der Messungen

Die in dieser Arbeit vorliegenden Messungen wurden an der Beschleunigeranlage der Gruppe Plasma-Wand-Wechselwirkung des Max-Planck-Instituts für Plasmaphysik in Garching durchgeführt. Für die Implantationen diente der 20 - 150 kV Ionenbeschleuniger PHARAO (Behrisch, 1967). Über drei Pumpstufen und durch einen Ablenkmagneten wird der Ionenstrahl für die Implantation auf die Nickelprobe gerichtet.

Das Tiefenprofil des implantierten Heliums wurde mit einem 1 MeV  $D_2^+$ -Ionenstrahl aus dem 2,5 MV Beschleuniger gemessen, ohne daß die Position der Probe verändert werden mußte (Abb.10).

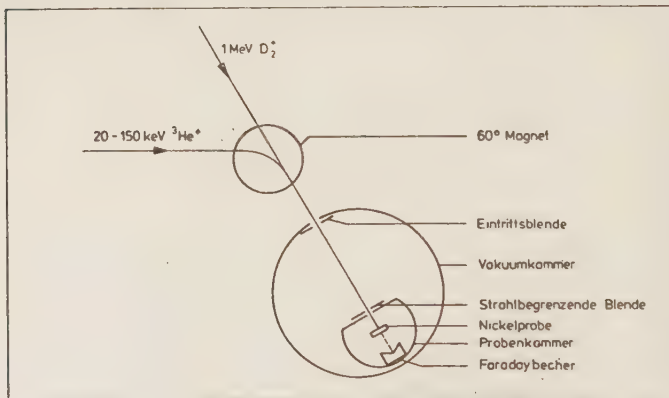
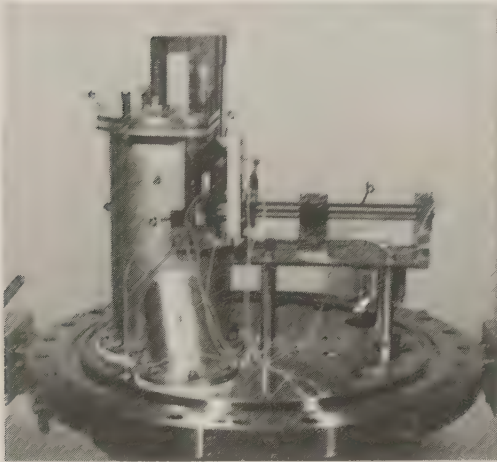


Abb.10 : Strahlführung in der Beschleunigeranlage

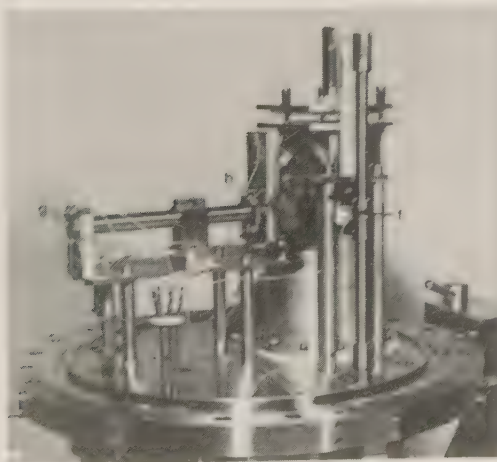
### 17.1. Apparatur

Die Abb. 11 zeigt die für diese Arbeit aufgebaute Meßapparatur, die auf dem Deckel eines Leuchtgefäßes angebracht ist. In diesem wird mit einer Turbopumpe (400 l/s) ein Druck von ca.  $1 \cdot 10^{-8}$  mbar erzeugt.

Abb. 11: Meßapparatur



- a) Probenkammer
- b) Strahlrohr
- c) Protonenzähler
- d) Photodiode
- e) Deckel der Probenkammer
- f)  $\alpha$ -Teilchenzähler
- g) 4-Sektoren-Blende und Eintrittsblende
- h) Analysierblende
- i) Gehäuse für das Massenspektrometer



a) Strahlführung (Abb. 12):

Die Ionen treffen innerhalb des Vakuumgefäßes auf eine Vier-Sektoren-Blende, die auf der Eintrittsblende angebracht ist. Durch gleichmäßige Ausleuchtung der Sektoren soll erreicht werden, daß die Ionenverteilung im Strahl möglichst symmetrisch zur Strahlachse ist. Über die Eintrittsblende ( $\varnothing = 3 \text{ mm}$ ) und strahlbegrenzende Blende ( $\varnothing 1,5 \text{ mm}$ ) gelangen die Ionen dann durch eine Öffnung in die Probenkammer, die als Meßvolumen für die Heliumreemission und die thermische Desorption (s. III.1) dient. Zwischen der strahl-

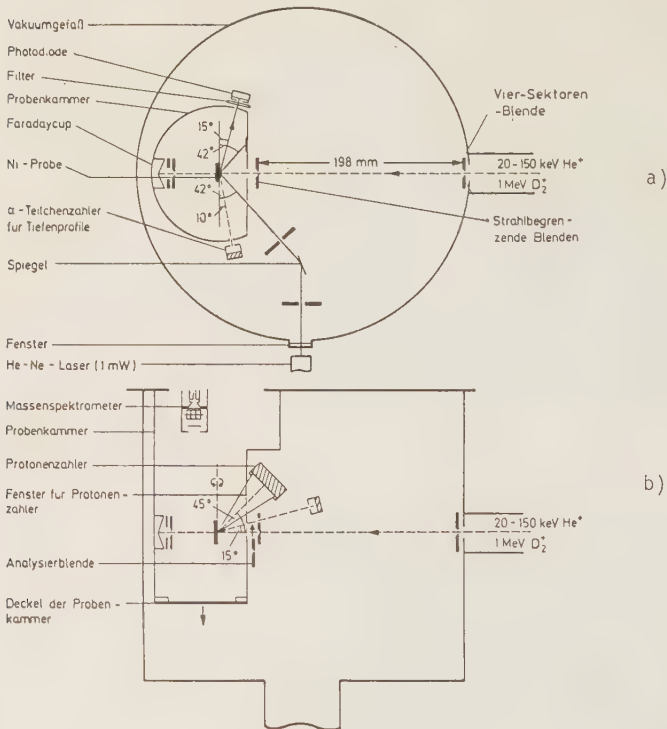


Abb. 12: Skizze der Apparatur: a) von oben b) von der Seite

begrenzenden Blende und der Probenkammer kann eine dritte kleinere Blende ( $\varnothing = 1 \text{ mm}$ ) in den Strahlengang gebracht werden. Diese dient als Strahlbegrenzung für die Analyse der Tiefenprofile. Sie gewährleistet, daß der von den Deuteronen getroffene Bereich innerhalb des Implantationsflecks auf der Probe liegt (Abb. 13). Zusätzlich

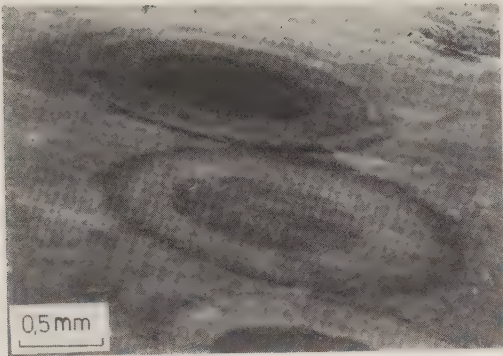


Abb. 13:

REM-Aufnahme der Implantationsflecken.

Die dunklen Flecken sind die Analyseflecken

dient sie zur Überprüfung der Homogenität des Ionenstrahles, in dem man das Verhältnis der Ionenströme durch die 1,5 mm-Durchmesser- und die 1 mm-Durchmesser-Blende mit dem Flächenverhältnis beider Blenden vergleicht.

Die Ionenstrommessung erfolgt am Target. Zur Unterdrückung der Sekundärelektronen wird die Probenkammer auf negatives Potential gelegt (- 240 V). Ein Vergleich mit einer Strommessung mit dem Faradaybecher nach Herausdrehen der Probe aus dem Strahlengang zeigt bei 40 keV Heliumionenenergie eine Differenz von 8 %. Diese wird vermutlich durch Verlust von Sekundärelektronen auf die geerdeten Teile des Probenmanipulators verursacht.

#### b) Probenkammer:

Innerhalb der Kammer befindet sich die Ionenquelle eines Quadrupolmassenspektrometers und der Probenträger, der auf einem Manipulator um eine Achse senkrecht zum Ionenstrahl drehbar und längs dieser Achse verschiebbar montiert ist. Die Probe kann von der Rückseite durch eine Widerstandsheizung über Wärmeleitung bis etwa 1000<sup>0</sup> C geheizt werden. Für den Probenwechsel wird die Probe durch eine von außen verschließbare Öffnung im Kammerboden aus dem Meßvolumen herausgefahren. Zugleich dient diese Öffnung zum Abpumpen des Kammer-

volumens. Während der Messungen wird der Kammerboden verschlossen (Verbesserung des Signal/Untergrund-Verhältnisses um etwa einen Faktor 13), und das Abpumpen erfolgt dann nur über die Öffnungen für den Ionenstrahl und die Detektoren. Der Druck steigt dadurch bei einem äußeren Vakuumgefäßdruck von etwa  $1 \cdot 10^{-8}$  mbar auf etwa  $10^{-7}$  mbar an. Betrachtet man die Öffnungen in der Probenkammer als Blenden und berechnet deren gesamten Leitwert, so erhält man 1,2 l/s. Zusammen mit einem Kammervolumen von ca. 2 l erhält man eine Zeitkonstante von ca. 1,7 s. Diese stimmt gut mit dem gemessenen Wert für Helium von 1,6 s überein.

#### c) Detektoren:

Für die Messung der Energieverteilung der  $\alpha$ -Teilchen zur Tiefenprofilanalyse wird ein Oberflächensperrschichtzähler mit einer nominalen Auflösung für 5,5 MeV  $\alpha$ -Teilchen von 13 keV HWB verwendet. Dieser ist in einem Winkel von  $80^\circ$  zur Oberflächennormalen der Probe angeordnet. Durch den flachen Winkel zur Probenoberfläche und einen kleinen Raumwinkel der Detektoröffnung wird eine gute Tiefenauflösung der Meßanordnung (Eckstein et al., 1976, Risch, 1978) erreicht (s.a. IV.5).

Die Registrierung der Veränderung des von der Probenoberfläche gestreuten Laserlichtes erfolgt mit einem Photoelement, vor dessen lichtempfindlicher Fläche ein He-Ne-Interferenzfilter angebracht ist (Transmission 50 %). Damit wird ein Teil der bei Erwärmung der Probe entstehenden Strahlung abgeblockt und somit die Beobachtung der Oberflächenveränderung auch bei höheren Temperaturen ( $> 100^\circ \text{C}$ ) ermöglicht. Der spiegelnd reflektierte Anteil des He-Ne-Laserstrahles trifft auf eine schwarz eloxierte Fläche an der Wand der Probenkammer. Dadurch wird die Untergrundintensität auf etwa 0,1 nA Photostrom verringert.

Die Oberflächensperrschichtzähler für Protonen zur schnellen Messung der gesamten implantierten He-Menge aufgrund des großen Raumwinkels ( $> 0,1$  Sterad) und der Zähler für Rutherford-Rückstreuungsmessungen werden in den hier geschilderten Messungen nicht verwendet.

## IV.2 Nachweiselektronik (Abb. 14)

### a) Messung der Fluenz und der Reemission

Mit Hilfe eines Vielkanalanalysators (VKA), der im Vielkanal-zählbetrieb (VKZ) betrieben wird, wird die von der Probe reemittierte Heliummenge als Funktion der auf die Probe geschossenen Ladung nach der in III.1.1 beschriebenen Methode gemessen. Der primäre

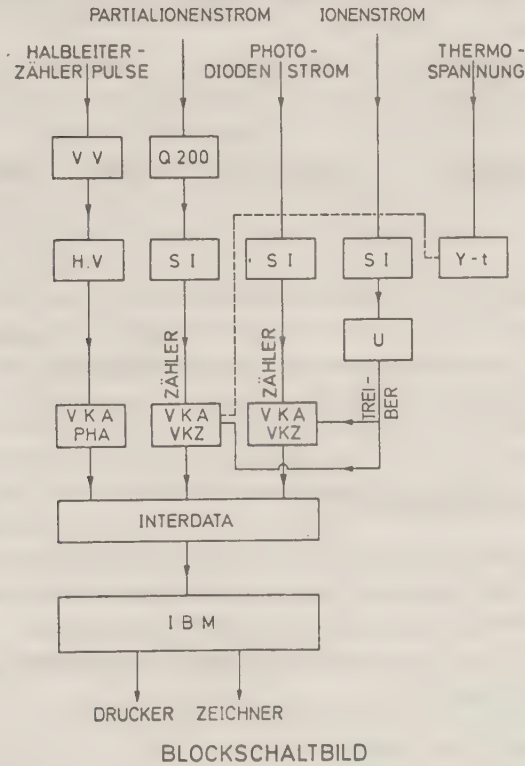


Abb. 14: VKA = Vielkanalanalysator im Pulshöhenanalysemodus (PHA)  
oder im Vielkanal-Zählbetrieb (VKZ)

SI = Stromintegrator  
VV = Vorverstärker  
HV = Hauptverstärker

Q 200 = Massenspektrometer  
(Quadrupol)  
U = Untersezter  
Y-t = Schreiber

Ionenstrom wird dazu mit einem Stromintegrator (SI) registriert. Dieser gibt nach einer vorher gewählten Ladung  $Q_x$  einen Puls an den VKA ab. Dadurch wird zum nächsten Kanal fortgeschaltet. Innerhalb der Fortschaltzeit  $\Delta t = Q_x / \overline{J_{He}^+}$  werden in dem gerade aktiven Kanal Pulse aufgesammelt, die von einem zweiten Stromintegrator stammen. Dieser mißt das Zeitintegral des Partialionenstroms  $J_p$  des Massenspektrometers und gibt - pro Ladung  $Q$  - einen Puls ab. Die Anzahl von Pulsen  $Z$ , die in einem Kanal aufgesammelt werden, ist somit gegeben (s.a. III.1.1): mit  $\Delta t' = Q / \overline{J_p}$

$$\frac{\Delta t}{\Delta t'} = Z = \frac{Q_x}{Q} \frac{\overline{J_p}}{\overline{J_{He}^+}} = \frac{Q_y}{Q} \quad \text{mit } Q_y = \overline{J_p} \cdot \Delta t$$

d.h., wenn der Untergrund in  $\overline{J_p}$  vernachlässigt werden kann (s.III.1.1):

$$Z \sim Q_y \sim \frac{\dot{N}_{Reem}}{\dot{N}_{ein}}$$

Damit wird jedem Kanal ein festes Strom-Zeit-Integral  $Q_x$  und somit ein Fluenzintervall ( $= Q_x / e \cdot A$  mit  $A$  = Beschußfläche,  $e$  = Elementarladung) zugeordnet. Die Reemissionsrate in diesem Fluenzintervall wird in dem Zeitintervall  $\Delta t$  integral gemessen.

#### b) Messung der Streulichtintensität

Nach derselben Methode wie unter a) wird die Streulichtintensität als Funktion der Fluenz gemessen. Dabei wird statt des Partialionenstromes der Photostrom von einem Stromintegrator registriert. Die Messungen von a) und b) werden simultan während des Ionenbeschusses an zwei VKA ausgeführt.

#### c) Messung der thermischen Desorption

Die Temperaturerhöhung mit der Zeit beim Erwärmen der Probe wird durch die Messung der Thermospannung eines Thermoelements mit einem y-t-Schreiber verfolgt. Die thermische Desorption des Heliums wird simultan dazu als Funktion der Zeit nach dem in a) beschriebenen

Verfahren gemessen, mit dem Unterschied, daß die Kanalfortschaltung durch eine Uhr nach einem festen Zeitintervall  $\Delta t$  erfolgt. Eine experimentelle Bestimmung der Desorptionskonstante  $v_r$  konnte nicht durchgeführt werden, da es aus apparativen Gründen nicht möglich war,  $\beta$  im erforderlichen Umfang (zwei Größenordnungen) zu ändern.

#### d) Tiefenprofilbestimmung

Die durch die  $\alpha$ -Teilchen in einem Halbleiterzähler verursachten Pulse werden über einen Vor- und einen Hauptverstärker im VKA, der im Pulshöhenanalysemodus arbeitet, entsprechend ihrer Pulshöhe auf die Kanäle verteilt. Dadurch entsteht eine Pulshöhenverteilung, die der Energieverteilung der  $\alpha$ -Teilchen entspricht und aus der das He-Tiefenprofil nach dem in III.4 beschriebenen Verfahren berechnet werden kann.

#### e) Datenverarbeitung

Sämtliche in den Vielkanalanalysatoren aufgesammelten Daten werden über eine Rechanlage auf Magnetbändern gespeichert und von dort aus mit Hilfe von Rechenprogrammen ausgewertet und als Spektren danach ausgegeben.

### IV.3. Probenpräparation

Für die Implantationen wird poly- und einkristallines Nickel mit der Reinheit  $> 99,999\%$  benutzt. Die Oberflächennormale der Ni-Einkristalle besitzen eine  $\langle 111 \rangle$  Orientierung, die im Kristall-Labor der TU München überprüft wurde. Vor dem Beschuß werden die Probenoberflächen mit Diamantpasten abnehmender Körnung mechanisch und danach elektrolytisch poliert. Anschließend erfolgt eine einstündige isotherme Temperung der Proben bei  $950^\circ\text{C}$  und einem Druck von etwa  $1 \cdot 10^{-6}$  mbar; beim Polykristall wird dadurch Kornwachstum angeregt, wodurch Korndurchmesser bis zu etwa  $100\text{ }\mu\text{m}$  entstehen (Durchmesser des Beschußflecks etwa  $1,5\text{ mm}$ ).

Um bei der Implantation des Einkristalles zu vermeiden, daß in die  $\langle 111 \rangle$  Richtung (Gitterführung) eingeschossen wird, wurde mit Hilfe des Manipulators die Probe um  $7^\circ$  zum Ionenstrahl verkippt (kritischer Winkel für 40 keV ist  $4,7^\circ$ ). Durch Vergleich der Rückstreuenspektren von 500 keV Heliumionen am Poly- und am Einkristall wird dann überprüft, ob nicht in eine Ebene mit Gitterführungseffekt implantiert wird.

#### IV.4 Versuchsdurchführung

Vor der Implantation wird der Ionenstrom so justiert, daß die Schwankungen nicht größere Werte als 10 % erreichen und die Abweichung des Stromverhältnisses durch die zweite und dritte Blende vom Flächenverhältnis der Blenden (2,25) nicht mehr als etwa 5 - 10 % beträgt. Ein Ergebnis der Überprüfung des Implantationsprofils mit Hilfe der Kernreaktion an verschiedenen Stellen des Beschußfleckes durch Verschiebung der Probe zeigt Abb. 15. Da der genaue Radius des Beschuß- und

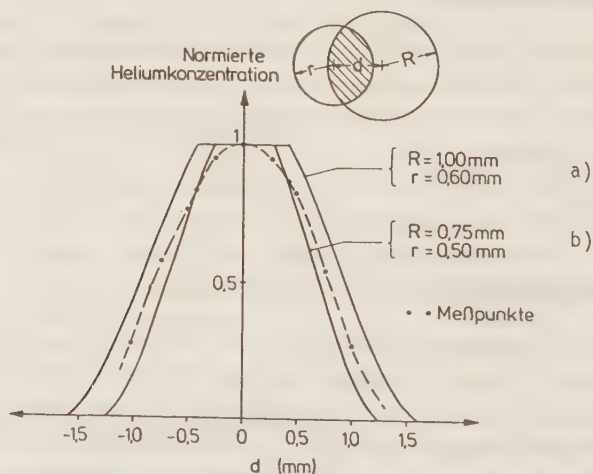


Abb. 15: Änderung der Heliumkonzentration auf dem Beschußfleck.

Ausgezogene Kurven entsprechen der berechneten schraffierten Fläche als Funktion von  $d$

( $R$  = Radius des Implantationsfleckes,  $r$  = Radius des Analysefleck,

a) aus der Geometrie des Beschußfleckes,

b) aus der Geometrie der Blenden

Analysefleckes nicht bekannt ist (Strahlaufweitung), ist für zwei Radienpaare die errechnete Abnahme der Implantationskonzentration bei angenommener Rechteckverteilung über dem Beschußfleck zusätzlich angegeben, und zwar einmal für die gemessenen Radien der Implantations- und Analyseblende, und einmal für die auf Abb. 13 ausgemessenen Radien der Beschußflecken.

Es zeigt sich, daß innerhalb des theoretischen Plateaus die gemessene Konzentration um ca. 5 bis 15 % absinkt (je nach r, R-Paar). Der gemessene weitere Abfall verläuft dann etwa parallel zu dem theoretischen.

Daraus kann man abschätzen, daß die Heliumverteilung über dem Beschußfleck um etwa 15 % inhomogen ist.

Mit Hilfe eines Heliumlecks wird die Verstärkereinstellung des Massenspektrometers überprüft.

Die Messungen des Heliumpartialdrucks und der Streulichtintensität des Lasers beginnen gleichzeitig mit der Implantation.

Der größte Teil der Messungen wird bei einer Proben temperatur von  $25^{\circ}\text{C}$ , einer Stromdichte von etwa  $50\text{ }\mu\text{A}/\text{cm}^2$  und einer Ionenenergie von 40 keV durchgeführt. Der Temperaturanstieg aufgrund des Beschusses auf der Probenoberfläche beträgt dabei etwa  $5^{\circ}\text{C}$ . Für weitere Messungen werden 20 keV, 90 keV und 150 keV Ionenenergie verwendet sowie Stromdichten bis zu  $600\text{ }\mu\text{A}/\text{cm}^2$ . Die Beschußtemperaturen liegen je nach Experiment zwischen  $25^{\circ}\text{C}$  und  $950^{\circ}\text{C}$ .

Bei den thermischen Desorptionsexperimenten kann die Erwärmung der Probe aus apparativen Gründen nur mit konstanter Heizleistung erfolgen. Dadurch wird die Temperaturänderung als Funktion der Zeit im Bereich kleiner  $100^{\circ}\text{C}$  und größer etwa  $700^{\circ}\text{C}$  nicht linear und damit die Temperaturskala der Desorptionsspektren in diesen Bereichen entsprechend gespreizt. Die maximale Proben temperatur von etwa  $1000^{\circ}\text{C}$  wird in 300 s erreicht.

Zur Tiefenprofilanalyse wird ein 1 MeV  $\text{D}_2^{+}$ -Ionenstrahl mit einer Stromdichte von etwa  $1\text{ }\mu\text{A}/\text{cm}^2$  auf die Probe geschossen. Die Analysefluenz beträgt dabei maximal 4 % der Implantationsfluenz. Ein Einfluß der Analyse auf die Tiefenprofile konnte trotz mehrmaliger Wiederholung der Tiefenprofilmessung an einem Implantationsfleck nicht festgestellt werden.

Bei Desorptionsexperimenten vorher analysierter Implantationen zeigt sich ein zusätzliches Desorptionsmaximum bei etwa  $270^{\circ}\text{C}$  durch Desorption von HD. Aus diesem Grund werden die Proben vor Desorptionsversuchen nicht nach dem Tiefenprofil analysiert.

#### IV.5 Betrachtung der Unsicherheiten der Messungen

##### a) Fluenz

Die Messung der Reemissionsrate und der Streulichtintensität erfolgt in Abhängigkeit von der geschossenen Ionenladung (Q). Die Unsicherheit dieser Größe aufgrund des Meßverfahrens (s. III.2) ist einmal durch den Meßfehler des Stromintegrators von  $\pm 0,2\%$  (Ortec) gegeben. Die Sekundärelektronenproduktion liefert einen zusätzlichen systematischen Fehler ( $+ 8\%$ ), der mit Hilfe einer Strommessung mit dem Faradaybecher korrigiert werden kann.

Die Reemissionsrate und die Oberflächenveränderungen sind jedoch abhängig von der Fluenz,  $F = Q/eA$ ,  $A$  = Fläche des Beschußflecks. Für mehrere Messungen unter gleichen äußeren Bedingungen (Temperatur, Energie usw.) zeigen die Spektren eine mittlere Verschiebung um  $15\%$  (relative Standardabweichung). Dies liegt wahrscheinlich an der unterschiedlichen, nicht homogenen Stromverteilung auf dem Beschußfleck (Abb. 15) bei verschiedenen Implantationen. Innerhalb einer Messung bewirkt dies einen systematischen Fehler in der Fluenz bei angenommener stabiler Stromverteilung über die Zeitdauer der Implantation, der nicht korrigiert werden kann.

Da wegen des Konzentrationsabfalles zum Rande des Beschußfleckes hin die Fleckflächen schwierig auszumessen sind, wurde mit Hilfe der Kernreaktionsmethode eine effektive Fläche bestimmt (s. III.3). Dazu wird die aufgesammelte Heliummenge  $n(\text{He}/\text{cm}^2)$  nach einer geschossenen Ladungsmenge Q bestimmt, bis zu der alle Ionen - bis auf die kinematisch reflektierten - aufgesammelt werden. Korrigiert man Q bezüglich der Reflexion und der Differenz zur Strommessung mit dem Faradaybecher, so kann man die effektive Beschußfläche berechnen:

$$A_{\text{eff}} = \frac{Q}{e \cdot n} \quad , \quad ; \quad e = \text{Elementarladung.}$$

Dies wurde für 9 Messungen durchgeführt. Im Mittel erhält man für  $A_{\text{eff}} = 1,5 \text{ mm}^2$  mit einer relativen Standardabweichung von 15 %. [Zum Vergleich: die aus der Geometrie des Strahlenganges (diffuse Verteilung vor der Eintrittsblende) mit den verwendeten Blendendurchmessern (3 mm und 1,5 mm) berechnete Kernfleckfläche beträgt  $1,3 \text{ mm}^2$ .] Zwei voneinander unabhängige Messungen besitzen danach bei gleicher geschossener Ladung  $Q$  Fluenzen,  $F = Q/A_{\text{eff}} \cdot e$ , die um  $\pm 15 \%$  voneinander abweichen können.

#### b) Reemissionsrate

Die Nachweisgrenze für die Reemissionsrate von Helium während des Beschusses wird nicht durch das Massenspektrometer vorgegeben (der kleinste nachweisbare Partialdruck liegt bei etwa  $10^{-13}$  mbar, der typische Heliumpartialdruck bei den Reemissionsratenmessungen etwa  $10^{-7}$  mbar), sondern durch die Schwankungen im Heliumionenstrom ( $\overline{J_{\text{He}}^+}$ ) und im Heliumuntergrund ( $\overline{J_{\text{pu}}}$ ) (s. III.1.1). Deren Einfluß auf die Reemissionsratenmessungen ist wegen des verwendeten Meßverfahrens abhängig von dem Anteil, den der Heliumuntergrund am gesamten Heliumpartialdruck hat. Dieser Anteil ist bei der Implantation, solange Helium fast vollständig aufgesammelt und nur der kinematisch reflektierte Anteil reemittiert wird, etwa 80 % des gesamten Partialdruckes. Ist die Probe gesättigt, dann wird das Helium zu 100 % reemittiert und der Untergrundanteil ist auf 15 % gesunken.

Nimmt man an, daß die Schwankungen im Untergrund und im primären Ionenstrom von jeweils 10 % nach dem gauß'schen Fehlerfortpflanzungsgesetz zur Meßunsicherheit der Reemissionsrate beitragen, dann hat diese Unsicherheit aufgrund des Meßverfahrens folgenden Wert: Solange der Untergrund 80 % beträgt, muß sich die Reemissionsrate (reflektierter Anteil) um mehr als 57 % verändern, um als physikalische Veränderung des Reemissionsverhaltens der Probe erkannt zu werden. Das heißt, die Reemissionsrate muß von ca. 4 % der Beschußrate auf mehr als 6 % der Beschußrate ansteigen. Ist der Untergrund nur 15 % des gesamten Heliumpartialdruckes, so genügen dazu Änderungen der Reemissionsrate von ca. 2 %. Wären die

Messungen untergrundfrei, so würden aufgrund des Meßverfahrens im idealen Fall (keine apparativen Einflüsse) nur Schwankungen registriert, die vom veränderten Reemissionsverhalten der Probe stammen.

Die Zeitauflösung der Reemissionsratenmessung wird vorgegeben durch den Quotienten  $Q_x / \overline{J_{He}^+}$  und beträgt bei einem primären Ionenstrom von  $1 \mu A$  10 s. Um die Reemissionsratenskala festzulegen, wurden Proben bis zur Sättigung beschossen. Zieht man den Anteil des Untergrundes ab, so erhält man die relative Reemissionsrate  $\dot{N}_{Reem} / \dot{N}_{ein}$ . Das Verhältnis der Reemissionsrate bei Sättigung zur Reemissionsrate allein aufgrund der kinematisch reflektierten Ionen (nach Abzug des Untergrundes) ergibt einen Faktor, mit dem die Reemissionsratenskala auch bei Messungen festgelegt werden kann, bei denen nicht bis zur Sättigung geschossen wird.

Dieser Faktor wurde bei mehreren Sättigungsimplantationen bestimmt und ist 27, mit einem mittleren quadratischen Fehler von 20 %.

Dies ist auch die Unsicherheit bei der Festlegung der Reemissionsratenskala, indem man die gemessene Reemissionsrate (nach Abzug des Untergrundes) am Beginn der Implantation mit 27 multipliziert. Damit erhält man die Reemissionsrate für 100 % Reemission.

### c) Laserstreulicht

Bei Implantationsbeginn ist der Photostrom  $J_{ph}$  kleiner als 0,1 nA, wodurch im VKA innerhalb des Zeitintervalls  $\Delta t \sim 10s$  gerade ein Puls/Kanal gezählt wird. Eine meßbare Veränderung von etwa 0,1 nA erfordert eine Anzahl von etwa 5000 Blistern auf der Probe.

### d) Thermische Desorption

Die thermische Desorption wird als Funktion der Zeit gemessen. Da zu diesen Experimenten die Ionenquelle des Beschleunigers ausgeschaltet ist, ist die Messung fast Helium-untergrundfrei ( $Pu < 10^{-10}$  mbar). Die Nachweisgrenze ist damit bestimmt durch die Einstellung

des Verstärkers. Dabei muß ein Kompromiß zwischen hoher Empfindlichkeit und Vermeidung von Übersteuerung bei hohen Desorptionsraten gefunden werden. Es wird daher eine Verstärkung gewählt, mit der eine Desorptionsrate von  $10^{12}$  Teilchen/s noch ein erkennbares Signal ergibt.

Die Fläche unter einer Desorptionskurve ist proportional zur gesamten desorbierten Gasmenge und abhängig von der Fluenz des implantierten Heliums, von der mittleren Heizrate  $\beta$  und der Verstärkereinstellung des Sekundärelektronenvervielfachers. Die Fluenzabhängigkeit wird schwächer mit zunehmender Fluenz, da sich dann Sättigungseffekte einstellen. Änderungen in der Verstärkung während des Erwärmens der Probe, nicht identisch reproduzierbaren Heizraten  $\beta$  ( $\Delta\beta/\beta \sim 10\%$ ) und die Unsicherheit in der Fluenz für mehrere Implantationen mit gleicher geschossener Ladung  $Q$  bewirken eine mittlere quadratische Abweichung von der mittleren gemessenen Fläche des Desorptionsspektrums von ca. 13 %.

Dies ist beim Vergleich von Flächen der Desorptionskurven zu berücksichtigen.

#### e) Temperatur

Die Temperatur wird über die Messung der Thermospannung eines Ni-CR/Ni-Al Thermoelementes bestimmt. Aus dem Ablesefehler der Thermospannung am y-t-Schreiber ergibt sich eine Unsicherheit von  $\pm 4$  Grad. Zusätzliche Temperaturunsicherheiten bei der Zuordnung von Desorptionsmaxima ergeben sich durch Änderungen in der Temperaturgeschwindigkeit (s. III.1.2).

#### f) Tiefenprofile

Die relative statistische Unsicherheit in einem Kanal des VKA mit  $H_i$  nachgewiesenen  $\alpha$ -Teilchen ist  $1/\sqrt{H_i}$ . Für die Tiefenprofile ergibt sich damit eine Unsicherheit in der lokalen Konzentration, die von etwa 10 % für die maximalen Konzentrationen mit sinkendem  $H_i$

größer wird. In den Tiefenprofilen ist dies als senkrechter Balken an einigen Stellen eingetragen. Für die gesamte implantierte Menge wird die relative statistische Unsicherheit bestimmt durch  $1/\sqrt{EH_i}$ . Für die hier vorgestellten Messungen liegt dies im Bereich von 3 % für die größte bis 10 % für die kleinste gemessene Implantationsmenge. Weiterhin ist zu berücksichtigen, daß zur Bestimmung der Heliumkonzentrationen die Wirkungsquerschnitte der Kernreaktion und die elektronischen Energieverlustdaten verwendet werden (Yarnell et al. 1963, Ziegler 1977, Andersen et al. 1977). Beim Vergleich mit Messungen anderer Autoren ist die daraus resultierende Unsicherheit von etwa 10 % zu berücksichtigen.

Die Tiefenauflösung der Meßanordnung hängt von verschiedenen Faktoren ab:

Detektorauflösung: Für 850 keV  $\alpha$ -Teilchen beträgt die gemessene Auflösung 17 keV. Die Verschlechterung gegenüber der nominalen Auflösung (13 keV) kann an der nicht ideal glatten Probenoberfläche sowie an elektronischen Störungen im Verstärker liegen.

Detektoröffnung: Teilchen aus etwas verschiedenen Tiefen mit unterschiedlichen Winkeln können dieselbe Wegstrecke bis zur Probenoberfläche durchlaufen, sodaß sie bei derselben Energie im VKA registriert werden, also scheinbar aus der gleichen Tiefe kommen. Großen Einfluß hat dies bei flachen Winkeln des Detektors zur Oberfläche und bei größeren Tiefen ( $> 100$  nm).

Streuometrie: Der Streuwinkel erscheint in Gl. (44) im Faktor  $\chi$  und geht direkt in  $dE_1/dx$  ein. Wegen des Faktors  $1/\cos \beta$  ist es günstig, flache Winkel zur Oberfläche hin zu wählen. Dabei muß jedoch der Einfluß der Detektoröffnung berücksichtigt werden.

### Endlicher Durchmesser

des Analysestrahls: Dies hat zur Folge, daß der Winkel  $\chi$  vom lateralen Reaktionsort abhängig ist, und daß damit auch  $x$  davon abhängt.

Oberflächenstruktur: Rauigkeiten (Blister), die groß gegen die Implantationstiefe sind, führen dazu, daß die  $\alpha$ -Teilchen bei flachen Austrittswinkeln, in Abhängigkeit vom Ort auf dem Implantationsfleck, verschieden lange Wege in der Probe zurücklegen. Dies führt zu einer Energieverschmierung. Für den Winkel zwischen Oberfläche und Detektor muß ein Kompromiß eingegangen werden zwischen der verbesserten Tiefenauflösung (für ideal glatte Oberflächen) bei flachem Detektorwinkel und der damit bedingten Verschlechterung durch Oberflächenrauigkeit.

Winkel-Straggling: Mehrfachstreuungsprozesse bewirken eine Aufweitung der ein- und auslaufenden Ionenstrahlen, wodurch verschieden lange Bahnen durchlaufen werden. Dies bewirkt einen unterschiedlichen Energieverlust und damit eine Unschärfe im Ort.

Energie-Straggling: Der Energieverlust eines Ions aus einer Tiefe ist ein statistischer Prozeß, wodurch ein anfangs monoenergetischer Ionenstrahl nach Durchlaufen der Wegstrecke  $x$  im Festkörper eine Energieverteilung erhält. Dadurch wird die Zuordnung Energie zur Tiefe unscharf.

Für größere Implantationstiefen ( $> 200 \mu\text{m}$ ) wird die Gesamtauflösung im wesentlichen von den beiden zuletzt genannten Einflüssen bestimmt und mit zunehmender Tiefe schlechter. Mit Hilfe eines Rechnerprogrammes (Möller 1980) wurde für die hier benutzte Geometrie unter Vernachlässigung des Einflusses der Oberflächenstruktur die Gesamtauflösung für die

Kernreaktion  ${}^3\text{He}(d,\alpha)\text{H}$  berechnet ( $E_0 = 500 \text{ keV}$ ). Danach beträgt sie an der Oberfläche 9 nm, bei einer Tiefe von 100 nm bereits 19 nm und bei 200 nm 29 nm. Diese Auflösungen sind in den Tiefenprofilen als horizontaler Balken angegeben. Die endliche Auflösung an der Probenoberfläche hat zur Folge, daß die Spektren über den Nullpunkt hinausragen.

## V. Messergebnisse

### Vorbemerkung:

Bei den Experimenten zur Implantation und zur thermischen Desorption zeigte es sich, daß bei Wiederholungsmessungen unter gleichen Meßbedingungen (Energie, Temperatur, Probenvorbehandlung usw.) dennoch die Form der Spektren im Detail voneinander abweichen konnten. Die Ursache dafür kann an der nicht gleichen Stromdichteverteilung des Ionenstromes über dem Beschußfleck bei den einzelnen Implantationen und/oder an den Probeneigenschaften liegen.

Allerdings betreffen diese Abweichungen nicht die prinzipielle Form und nicht die charakteristischen Merkmale der Spektren. Diese ändern sich erst, wenn Meßbedingungen der oben genannten Art verändert werden.

Bei der Darstellung der Meßergebnisse wird daher im wesentlichen nur auf solche Veränderungen und Merkmale eingegangen, während eine Erörterung der übrigen - zum Teil nicht reproduzierbaren Effekte - nicht erfolgt.

### V.1 Gasreemissionsrate und Oberflächenveränderung von Nickelproben während der Implantation

#### V.1.1 Implantation bei Zimmertemperatur

##### a) Reemission und Streulichtintensität

Abbildung 16 zeigt typische Beispiele für den Verlauf der Gasreemissionsrate und der Streulichtintensität des Lasers in Abhängigkeit von der Fluenz während der Implantation von Heliumionen mit einer Energie von 40 keV auf ein- und polykristalline Nickelproben. Der Untergrund ist bei den Reemissionsspektren abgezogen. Die Messungen (a) und (b) wurden unter gleichen Bedingungen am Einkristall ausgeführt. Die Ionenstromdichte betrug dabei jeweils ca.  $50 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ . Man erkennt, daß die Spektren im Detail Abweichungen aufweisen, jedoch eine Reihe von typischen, reproduzierbaren Gemeinsamkeiten besitzen.

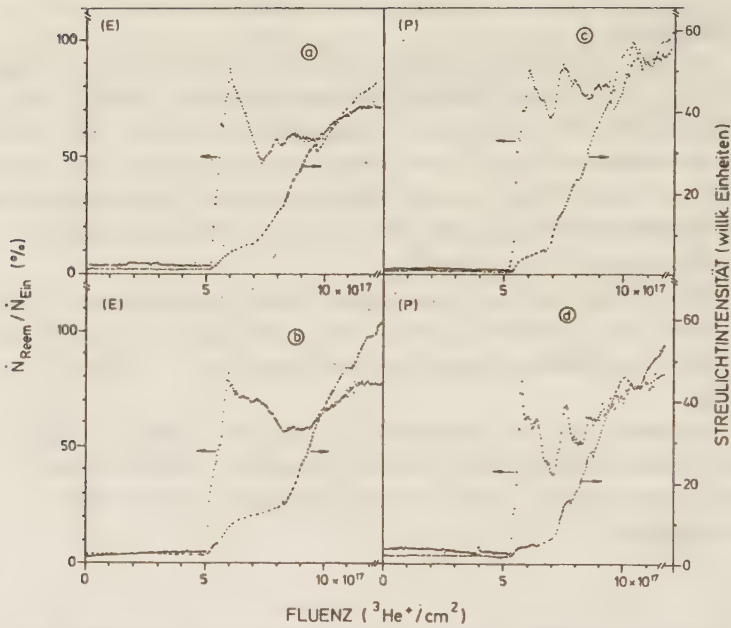


Abb.16: Heliumreemission und Oberflächenveränderung bei 40 keV  
 $^3\text{He} \rightarrow \text{Ni}$  ( $25^\circ \text{C}$ )  
 (E) Einkristall  
 (P) Polykristall  
 (a), (b), (c), (d) siehe Text

Die Spektren (c) und (d) zeigen Messungen bei Beschuß einer polykristallinen Probe und wurden jeweils mit einer He-Stromdichte von  $175 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  bzw.  $50 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  gemessen. Die Unterschiede, die sich hier zeigen, liegen innerhalb der Reproduzierbarkeit der Spektren. Es läßt sich daher kein typischer Einfluß der Stromdichte feststellen.

Die Spektren zeigen folgenden charakteristischen Verlauf:

Die Reemissionsrate  $\dot{N}_{\text{Reem}}/\dot{N}_{\text{ein}}$  bleibt bis zu einer Fluenz von etwa  $5 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  auf einem nahezu konstanten Wert von ca. 3-4 %, der mit dem Reflexionskoeffizienten von 40 keV Heliumionen an Nickel übereinstimmt (Eckstein und Verbeek, 1979). Bei einer kritischen Fluenz von im Mittel  $5.2 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2 \pm 15 \%$  erfolgt ein steiler Anstieg der Gasreemissionsrate, unabhängig davon, ob auf einkristallines oder polykristallines Material geschossen wird. Gleichzeitig mit dem Anstieg der Reemissionsrate setzt verstärkte Streulichtintensität ein, die darauf hinweist, daß sich die Oberflächenstruktur verändert hat. Die Reemissionsrate durchläuft bei weiterem Beschuß mehrere Maxima, von denen das erste besonders ausgeprägt ist und typisch zwischen 50 % und 120 % der Implantationsrate ( $\dot{N}_{\text{ein}}$ ) liegen kann. Die nachfolgenden Maxima sind beim Polykristall im Vergleich zum Einkristall deutlicher ausgeprägt. Implantiert man noch weiter, so steigt die Reemissionsrate danach fast monoton an. Die Reemission ist während des gesamten Beschusses strahlinduziert, das heißt, eine Beendigung der Implantation führt gleichzeitig ( $\Delta t \ll 1 \text{ s}$ ) zu ihrem Verschwinden.

Die Streulichtintensitätsveränderung ist mit der Heliumreemissionsrate in folgender Weise korreliert: Die Steigung des Streulichtsignals (Blisterbildungsrate) ist etwa bis zu der Fluenz, bei der die Reemissionsrate das erste Maximum erreicht, nahezu unverändert. Beim Maximum wird sie flacher. Gleichzeitig verringert sich die Reemissionsrate. Wenn sie wieder ansteigt, dann wird auch die Steigung des Streulichtsignales wieder größer.

Beim Polykristall wiederholt sich diese Korrelation bei den nachfolgenden Maxima in abgeschwächtem Ausmaß.

In Abb. 17 ist der Verlauf der Reemissionsrate und der Streulichtintensität für einen größeren Fluenzbereich beim Beschuß von polykristallinem Nickel wiedergegeben. Die Spektren sind hier erheblich komprimiert, sodaß einzelne Meßpunkte nicht mehr aufgelöst werden können. Daher wurden die Punkte durch eine Linie ersetzt.

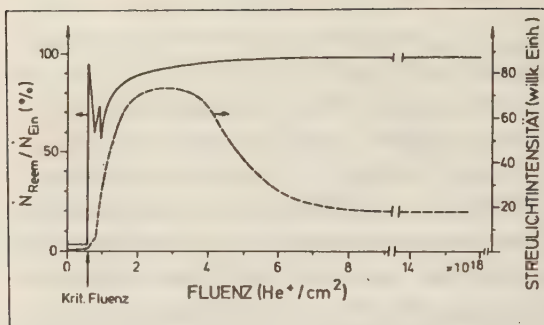


Abb.17:

Heliumreemission  
und Oberflächen-  
veränderung bei  
40 keV



Reemissionsrate und Streulichtintensität erreichen mit zunehmender Fluenz etwa gleichzeitig einen Maximalwert. Die Reemissionsrate von dann 100 % verändert sich bis zu der höchsten geschossenen Fluenz nicht mehr, während die Streulichtintensität ab etwa  $3 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  wieder geringer wird. Dies zeigt eine zunehmende Glättung der Oberfläche an, mit geringerer diffuser Reflexion. Der Anstieg zur Reemissionsrate von 100 % sowie Anstieg und Abfall der Streulichtintensität sind durch Inhomogenitäten im Ionenstrahl (ca. 15 %, s. Abb. 14) zusätzlich verbreitert. Jedoch trägt dies nicht in bestimmendem Ausmaß zur Form der Kurven bei.

#### b) Oberflächenveränderung

Die durch den Beschuß mit verschiedenen Fluenzen entstehende Oberflächenstruktur auf einem Einkristall ist in Abb. 18 dargestellt. Darin sind jeweils eine Skizze des Reemissionsraten- und Streulichtspektrums als Hinweis für das Stadium der Implantation, sowie je eine Aufnahme mit Hilfe eines Lichtmikroskopes (großes Bild) und eines Rasterelektronenmikroskopes der beschossenen Probenoberfläche angegeben. Es zeigte sich - wie auch im Streulichtspektrum zu sehen ist -, daß Blisterbildung erst beim Beginn der verstärkten Reemissionsrate einsetzt.

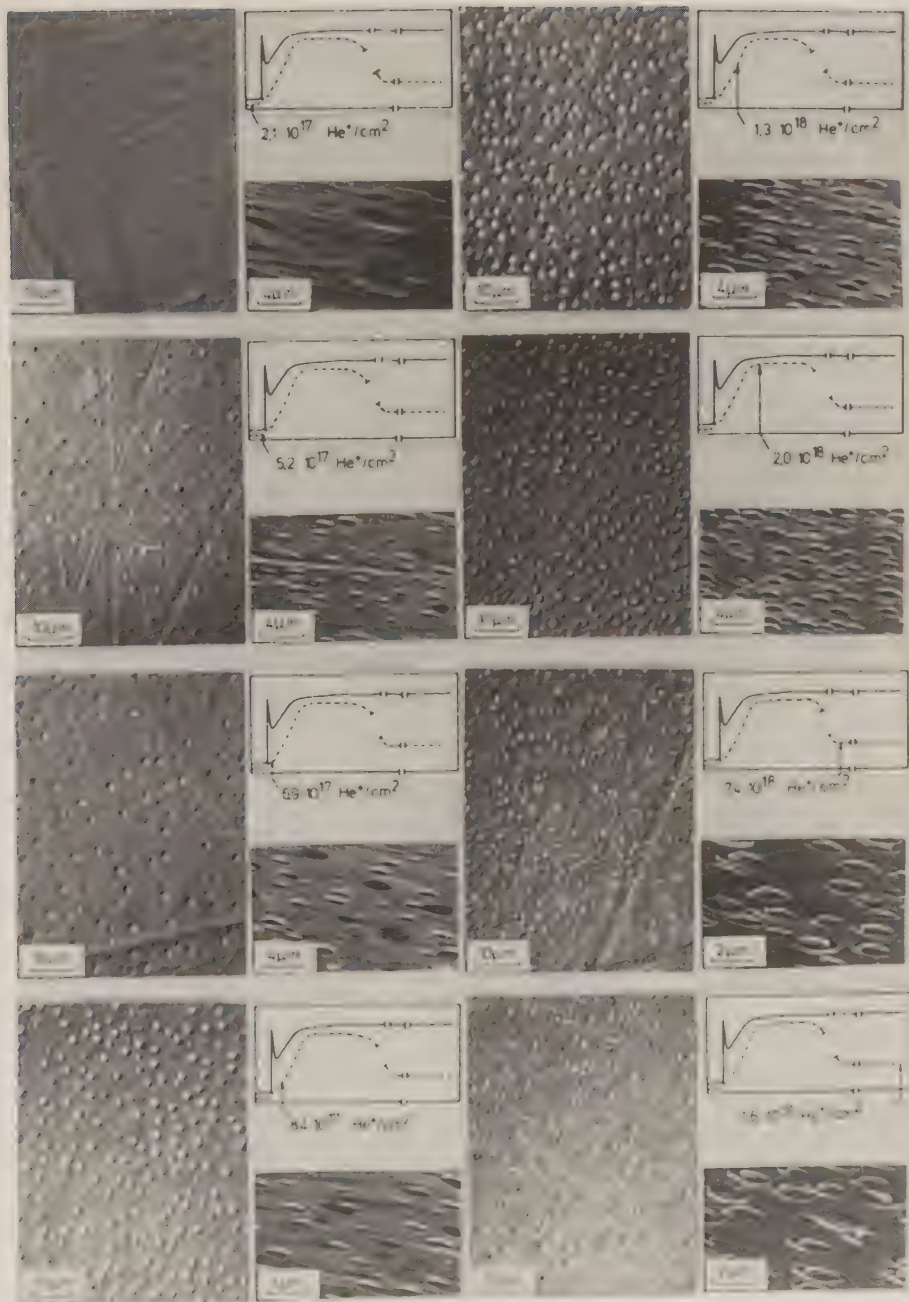


Abb. 18: LM und REM-Aufnahmen der Probenoberfläche nach Heliumbeschuß mit verschiedenen Fluenzen ( $40 \text{ keV } ^3\text{He}^+ \rightarrow ^{250}\text{C}$  Ni)

Für wachsende Fluenz bis etwa  $2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  stellt man eine Zunahme der Blisterdichte fest. Die Verringerung des Streulichtsignals bei hohen Fluenzen ( $\gtrsim 5 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) erfolgt aufgrund einer Veränderung der Struktur der Blisterdeckel. Vom Blisterrand her sind diese hier verkleinert. Auf den Flächen zwischen den Blistern bildet sich eine rillenförmige Struktur aus. Derartige Oberflächenveränderungen findet man auch bei sehr hohen Heliumfluenzen ( $> 10^{19} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) auf anderen Metallen als Folge der Zerstäubung durch die Ionen (z.B. Scherzer 1982).

Der Beschuß eines Polykristalls liefert bei hohen Fluenzen ( $> 3 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) dieselben Veränderungen der Oberfläche. Bei der kritischen Fluenz beobachtet man jedoch Blisterdichten und Blistergrößen, die sich mit den Körnern, auf denen sie gefunden werden, ändern (Abb. 19). Ein ähnliches Verhalten wurde bereits früher von

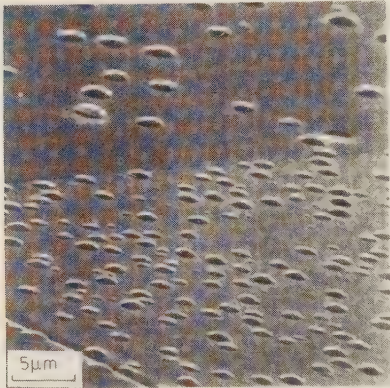


Abb. 19:

Blistergröße und Blisterdichte  
auf verschiedenen Kristalliten

40 keV  $^3\text{He}$   $^{25}\text{C}$   $\rightarrow$  Ni(P)

Verbeek et al. (1974) auf polykristallinem Molybdän nach Heliumbeschuß entdeckt.

Die Größenverteilung der Blister auf dem Einkristall gibt Abb.20 wieder. Die mittlere Deckeldicke beträgt ca. 170 nm.



Abb. 20 :

Verteilung der Blistergrößen

40 keV  $^{25}\text{C}$   
 $^{3}\text{He} \rightarrow \text{Ni}(\text{E})$

### c) Tiefenprofile und Aufsammlerkurven

Die Entwicklung der Heliumtiefenprofile mit der Fluenz wird in Abb. 21 gezeigt. Durch die Meßpunkte gezogene Linien dienen hier

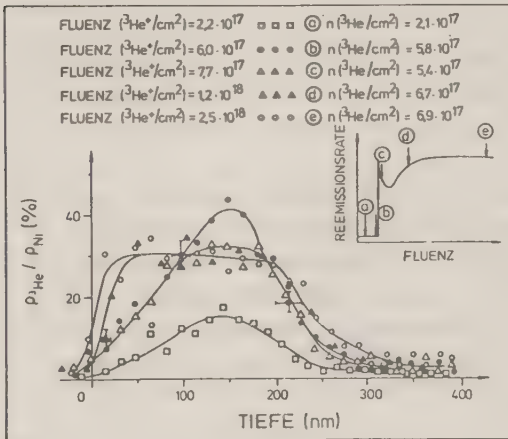


Abb. 21:

Heliumtiefenprofile  
in Abhängigkeit von  
der Heliumfluenz

$n$  = Flächenkonzentration

40 keV  $^{25}\text{C}$   
 $^{3}\text{He} \rightarrow \text{Ni}(\text{E})$

und bei anderen Tiefenprofilen in dieser Arbeit nur als Betrachtungshilfen, stellen also keine berechneten Verteilungen dar. Die kleinere Skizze in der Abb. 21 bietet wieder eine Orientierungshilfe über das Stadium der Implantation, das vor der Messung der einzelnen Spektren erreicht worden ist.

Die kritische Fluenz für verstärkte Reemission liegt bei dieser Meßreihe bei  $6 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ . Dies ist innerhalb der mittleren Abweichung ( $\pm 15 \%$ ) von der mittleren kritischen Fluenz ( $5,2 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ). Beschuß bis zur kritischen Fluenz ergibt eine Tiefenverteilung ähnlich einer Gaußverteilung mit einer häufigsten Reichweite von etwa 150 nm. Die Reichweitenrechnungen mit dem Programm TRIM (siehe II.2) ergeben für 40 keV  $^3\text{He}$  in Nickel eine häufigste Reichweite von 145 bis 150 nm und somit gute Übereinstimmung.

Die Form der Tiefenprofile ändert sich nach dem Überschreiten der kritischen Fluenz folgendermaßen: Es verringert sich die maximale lokale Konzentration im Bereich der häufigsten Reichweite von 40 % auf etwa 30 %, und die Profile verbreitern sich. Der Vergleich der aufgesammelten Heliummenge (n) mit der Fluenz zeigt, daß verstärkte Reemission nach dem Erreichen der kritischen Fluenz erfolgt und die Reemissionsrate bei dieser Messung 100 % überschritten hat. Die Sättigungsflächenkonzentration liegt bei etwa  $7 \times 10^{17} \text{ He}/\text{cm}^2$ . Das Tiefenprofil zeigt dann über die gesamte Reichweite eine gleichbleibende lokale Heliumkonzentration von ca. 30 %. Berücksichtigt man die Tiefenauflösung, die mit zunehmender Tiefe schlechter wird, so entspricht diese Verteilung etwa einem Rechteckprofil. Die Tiefenprofilentwicklung in polykristallinem Nickel zeigt davon keinen Unterschied.

Trägt man die gesamte aufgesammelte Heliummenge gegen die Fluenz auf, so erhält man die Aufsammlerkurve der Implantation. In Abb.22 sind zwei Aufsammlerkurven für 40 keV  $^3\text{He}$ -Implantation aufgezeichnet, wie sie mit Hilfe der Kernreaktion gemessen und - für dieselbe Messung - aus der Gasremissionskurve berechnet wurden. Zusätzlich ist die simultan zur Reemissionsrate gemessene Veränderung der Streulichtintensität wiedergegeben.

Wie bei den oben beschriebenen Reemissionsmessungen wird ab der kritischen Fluenz erheblich weniger aufgesammelt (verstärkte Reemission) und dann erst allmählich die Sättigungskonzentration erreicht. Man erkennt auch hier die Korrelation zwischen Streulichtsignal und Aufsammlerverhalten:

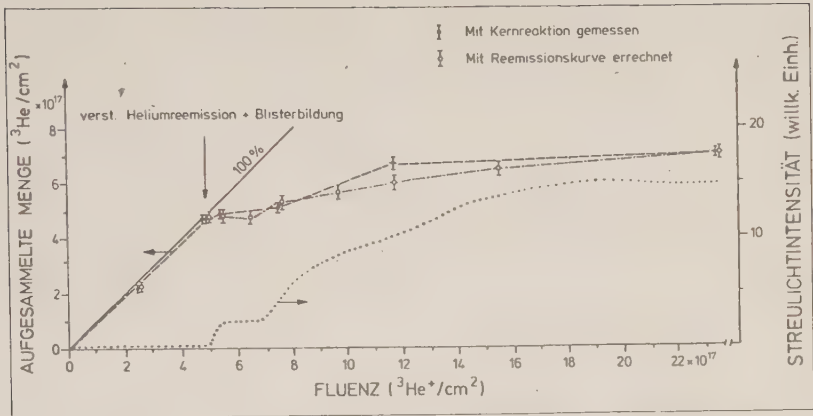


Abb. 22: Aufsammlerkurve und Oberflächenveränderung  $40 \text{ keV } {}^3\text{He} \rightarrow {}^{25}\text{C}$

Von der Fluenz an ( $\approx 5,5 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ), bei der die Blisterbildungsrate fast verschwindet, wird auch fast kein Helium mehr aufgesammelt. Steigt die Blisterbildungsrate (etwa bei  $F = 7 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ), dann wird auch weiter aufgesammelt. Praktisch keine Blister werden mehr zusätzlich gebildet, wenn die Probe mit Helium nahezu gesättigt ist.

#### d) Implantation mit anderen Beschußenergien

Beschuß mit  $150 \text{ keV}$  Heliumionen unter sonst gleichen Bedingungen wie bei  $40 \text{ keV}$  ergibt ebenfalls das gleichzeitige Eintreten der verstärkten Gasremissionsrate und der Blisterbildung. Es zeigt sich jedoch, daß die Gasremissionsrate keine typischen Maxima durchläuft und das Streulichtsignal zunächst allmählich ansteigt (Abb. 23). Die Blister sind hier erheblich größer (Abb. 24), und man erhält zum Teil, auch Flaking (s.a. Abb. 44 ( $Z = 0$ )), also das Abschälen von Teilen des Beschußfleckes. Dadurch kann die Streulichtintensität zunächst ansteigen und - nachdem der Flake abgelöst ist oder durch Strahlheizung verdampft - wieder absinken (Abb. 23). Tiefenprofile konnten mit dem verwendeten Detektor nicht gemessen werden, da aufgrund der größeren Eindringtiefe der Heliumionen die Energieverteilung der  $\alpha$ -Teilchen bis in den Protonenbereich verbreitert ist (s. III.3).

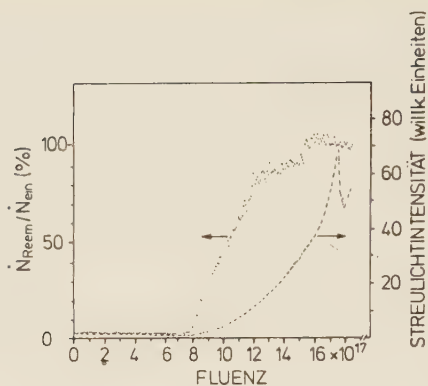


Abb. 23:

Heliumreemission und  
Oberflächenveränderung  
150 keV  $^3\text{He}^+ \rightarrow \text{Ni(E)}$   
 $^{25^\circ\text{C}}$

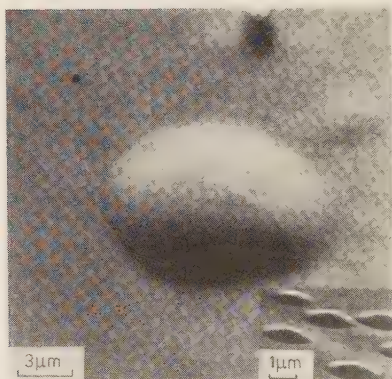


Abb. 24:

Blister: 150 keV  $^3\text{He}^+ \rightarrow \text{Ni(E)}$   
 $^{25^\circ\text{C}}$

(zum Vergleich:

40 keV  $^3\text{He}^+ \rightarrow \text{Ni(E)}$  Blister)

Die Gleichzeitigkeit von Blisterbildung und verstärkter Heliumreemission wurde auch für den Beschuss mit 20 keV und 90 keV geprüft, indem im Moment des Beginns verstärkter Reemission die Implantation unterbrochen wurde. Die anschließende mikroskopische Untersuchung zeigte Blister auf der Probenoberfläche. Diese sind nicht vorhanden, wenn mit unterkritischer Fluenz Helium implantiert wird.

## V.1.2 Implantation bei höheren Temperaturen (> Zimmertemperatur)

### a) Reemission und Streulichtintensität

Die Abbildungen 25 und 26 zeigen den Verlauf der Streulichtintensität und der Heliumreemissionsrate während eines 40 keV Heliumbeschusses auf ein- und polykristallines Nickel bei den angegebenen Temperaturen  $T_B$ . Grundsätzlich ergeben sich dabei folgende Veränderungen, sowohl beim Einkristall wie auch beim Polykristall:

Verstärkte Streulichtintensität setzt bei allen Temperaturen gleichzeitig mit verstärkter Reemissionsrate ein.

Das erste Reemissionsratenmaximum ist bei höheren Beschußtemperaturen ( $> 250^\circ\text{C}$ ) deutlicher ausgeprägt.

Die kritische Fluenz wird bei Temperaturen über ca.  $300^\circ\text{C}$  kleiner, während man bei  $260^\circ\text{C}$  (bzw.  $290^\circ\text{C}$ ) noch keine Verschiebung feststellt, die außerhalb der Unsicherheit der kritischen Fluenz liegt.

Die oben beschriebene Korrelation zwischen Streulichtveränderung und Heliumreemissionsrate ist vor allem bei  $260^\circ\text{C}$  bzw.  $290^\circ\text{C}$  gut wiederzuerkennen. Bei den höheren Temperaturen ( $580^\circ$  bzw.  $640^\circ\text{C}$ ) zeigt sich diese Korrelation noch bis zur Fluenz des Reemissionsratenmaximums. Bei  $950^\circ\text{C}$  Beschußtemperatur am Polykristall ergibt sich bereits zu Beginn der Implantation eine erhöhte Reemission, die sich zunächst während der Implantation etwas verringert. Ein ähnliches Verhalten beobachtet man auch beim Beschuß bei  $640^\circ\text{C}$  bzw. am Einkristall ( $580^\circ\text{C}$ ,  $720^\circ\text{C}$ ). Danach erfolgen oszillationsähnliche, simultane Veränderungen der Reemissionsrate und der Streulichtintensität (Oberflächenveränderung).

Auch am Einkristall kann man bei einer Beschußtemperatur von  $720^\circ\text{C}$  diese Oszillationen im Spektrum des Streulichtsignals erkennen.

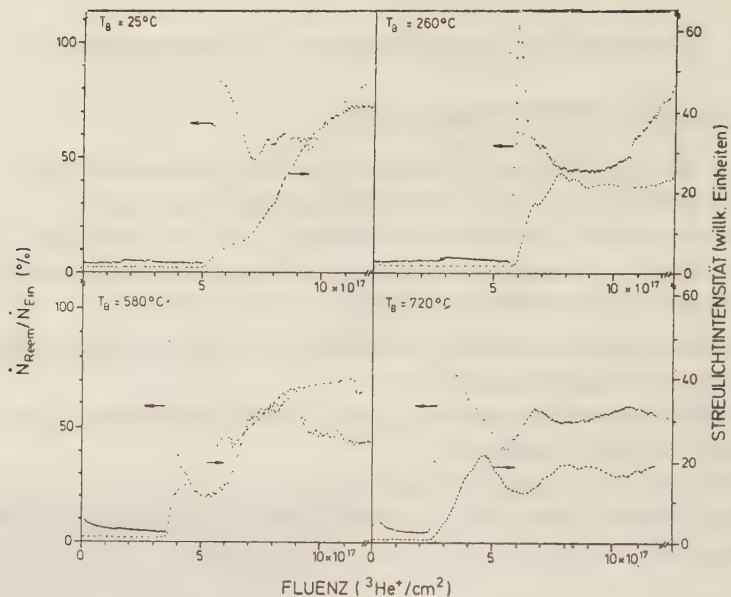


Abb. 25: Heliumreemissionsrate und Oberflächenveränderung für 40 keV  $^3\text{He}^+ \rightarrow \text{Ni(E)}$  bei den angegebenen Beschußtemperaturen  $T_B$

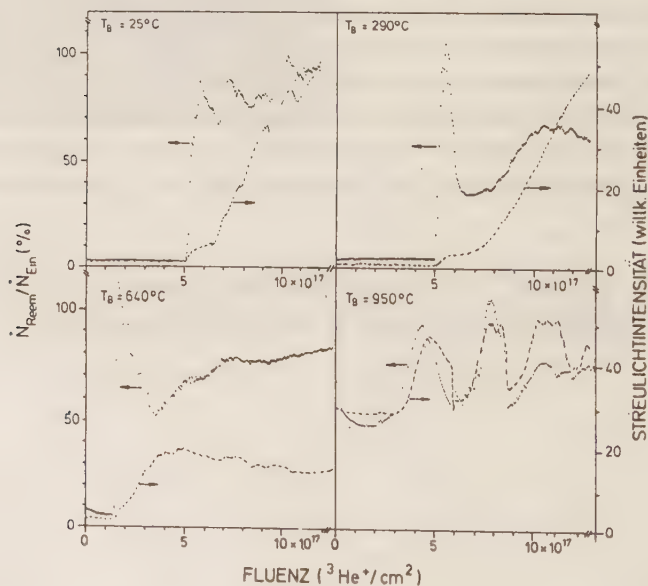


Abb. 26: Heliumreemissionsrate und Oberflächenveränderung für 40 keV  $^3\text{He}^+ \rightarrow \text{Ni(P)}$  bei den angegebenen Beschußtemperaturen  $T_B$

## b) Oberflächenveränderung und Tiefenprofile

Die Oberflächenstrukturen für die in Abb. 25 angegebenen Beschußtemperaturen zeigt am Beispiel des Einkristalls Abb. 27. Die Fluenz beträgt bei diesen Messungen  $1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ .

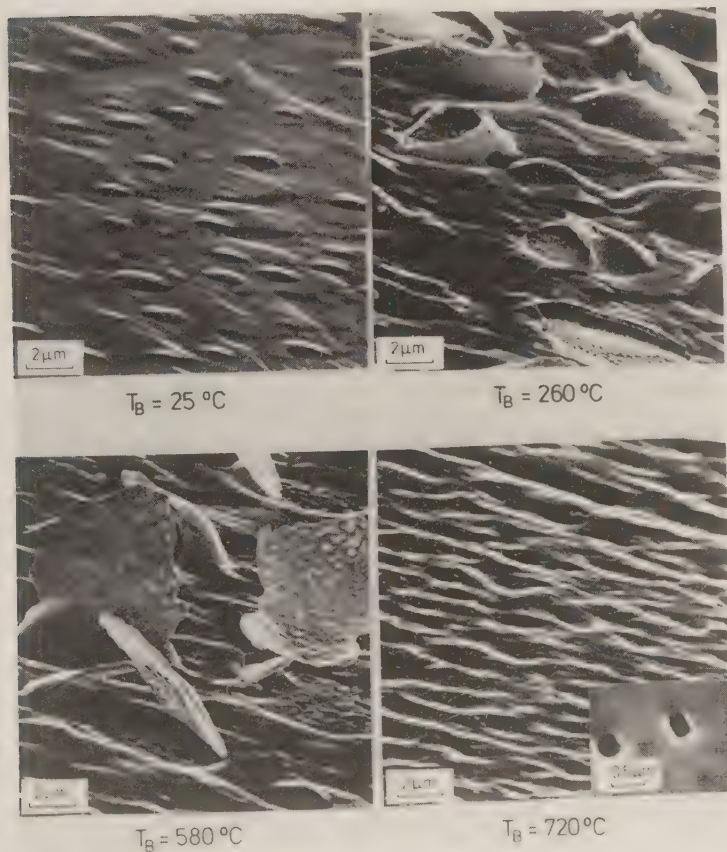


Abb. 27: Oberflächenstruktur von Ni(E) nach Beschuß mit  $40 \text{ keV } ^3\text{He}^+$  bei den angegebenen Beschußtemperaturen  $T_B$

Die Blisterdeckeldurchmesser sind bei Beschußtemperaturen von  $260^{\circ}\text{C}$  und  $580^{\circ}\text{C}$  erheblich größer als bei  $25^{\circ}\text{C}$ . Dabei haben die Blister bei  $260^{\circ}\text{C}$  eine plattenähnliche Form, die quer durch den Blister aufgerissen ist, während bei  $580^{\circ}\text{C}$  die Deckel wieder eine stärkere Wölbung aufweisen und entlang des Umfangs abgerissen sind. Die Innenfläche der Blisterdeckel zeigt hier blasenartige Strukturen.

Bei  $720^{\circ}\text{C}$  Beschußtemperatur werden keine Blister mehr beobachtet. Stattdessen bilden sich Löcher in der Oberfläche aus. Dasselbe gilt auch für den Beschuß bei  $950^{\circ}\text{C}$  auf den Polykristall.

Die Tiefenprofile zu den Implantationen des Einkristalls haben ungefähr die Form wie nach Zimmertemperaturbeschuß, besitzen jedoch eine geringere maximale Konzentration. Es erfolgt aber keine Verbreiterung über die maximale Reichweite der Heliumionen hinaus (Abb. 28).

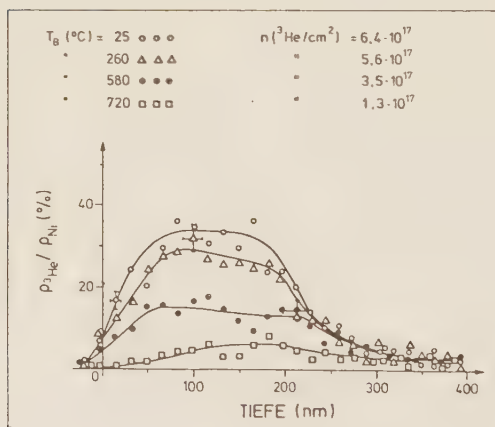


Abb. 28:

Heliumtiefenprofile nach Beschuß von  $40\text{ keV } ^3\text{He}^+ \rightarrow \text{Ni}$  bei den angegebenen Temperaturen  $T_B$   
 (Fluenz =  $1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ )  
 $n$  = Flächenkonzentration

## V.2 Thermische Desorption von Helium aus Nickel und thermische Oberflächenveränderung nach der Implantation

### 5.2.1 Veränderung der thermischen Desorption mit der Fluenz

Die im folgenden wiedergegebenen Meßergebnisse wurden mit der in II.3 beschriebenen Methode ermittelt. In den einzelnen Desorptionsspektren sind der besseren Darstellung wegen die Meßpunkte (Kanäle) durch durchgezogene Linien ersetzt.

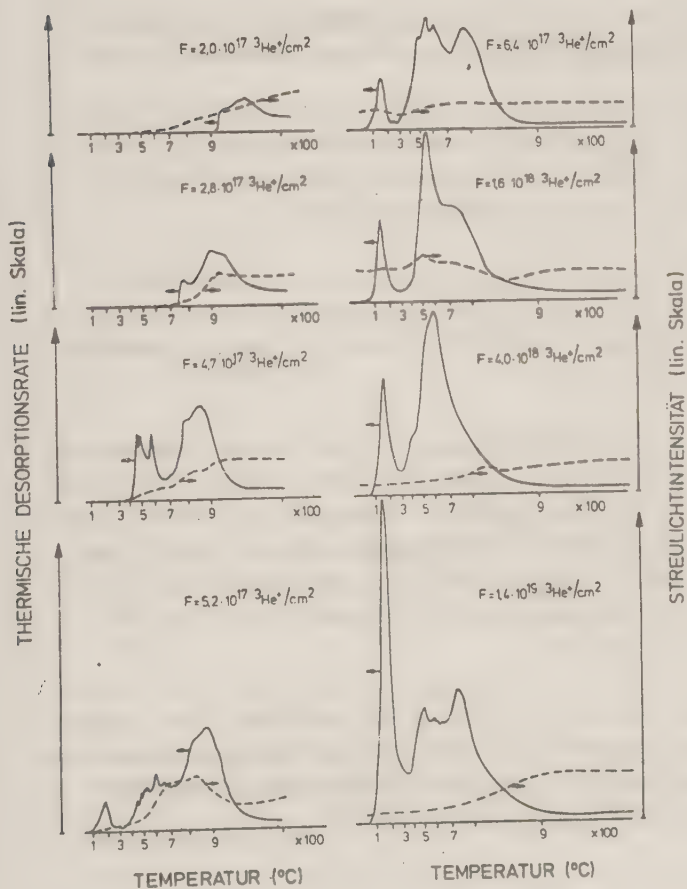


Abb. 29:

Thermische Desorption und Oberflächenveränderung nach 40 keV

$^{25}_{\text{He}} \rightarrow \text{Ni}(E)$   
mit den angegebenen Fluenzen

In Abb. 29 ist die thermische Desorptionsrate gegen die Temperatur für verschiedene Fluenzen aus mit 40 keV  $^3\text{He}$  beschossenen Einkristallproben aufgetragen. Zusätzlich wird die Veränderung der Streulichtintensität wiedergegeben. Die etwas unterschiedlichen Temperaturskalen auf der linken und rechten Hälfte der Abb. 29 haben folgenden Grund:

Es können jeweils vier Messungen auf einer Probe ausgeführt werden. Danach muß diese ausgewechselt werden. Dabei wird der Wärmekontakt zur Heizung (Wärmeleitung) verändert, wodurch sich auch der Temperatur-Zeit-Verlauf bei der Erwärmung verändert.

Folgende zwei charakteristischen Veränderungen der Desorptionsspektren in Abhängigkeit von der Fluenz können festgestellt werden:

- (i) die Anfangstemperatur für die Desorption sinkt mit steigender Fluenz bis zur kritischen Fluenz. Unterhalb einer Fluenz von  $5 \times 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  wird bis zur maximal erreichbaren Temperatur ( $\approx 1000^\circ \text{C}$ ) kein Helium meßbar freigesetzt.
- (ii) Von der kritischen Fluenz an verschiebt sich diese Anfangstemperatur nicht weiter. Dafür erhält man ein zusätzliches Desorptionsmaximum zwischen  $100^\circ \text{C}$  und  $200^\circ \text{C}$ , das mit zunehmender Fluenz größer wird.

Obwohl zwischen  $4 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  und  $1,4 \times 10^{19} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  nicht mehr wesentlich zusätzliches Helium aufgesammelt wird, verändert sich dennoch die Struktur des Desorptionsspektrums, indem das Niedertemperaturmaximum (bei ca.  $150^\circ \text{C}$ ) auf Kosten des Hochtemperaturteiles ( $> 300^\circ \text{C}$ ) des Spektrums zunimmt. Für den Beschuß der polykristallinen Probe ergibt sich innerhalb der Reproduzierbarkeit der einzelnen Spektren kein anderes Ergebnis (Abb. 30).

Für eine Fluenz von  $1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  wurde aus 8 bzw. 7 Messungen die mittlere Temperatur für die beiden Desorptionsmaxima beim Polyz- bzw. Einkristall bestimmt (Tab. 1). Die angegebenen Unsicherheiten sind die Standardabweichungen vom Mittelwert.

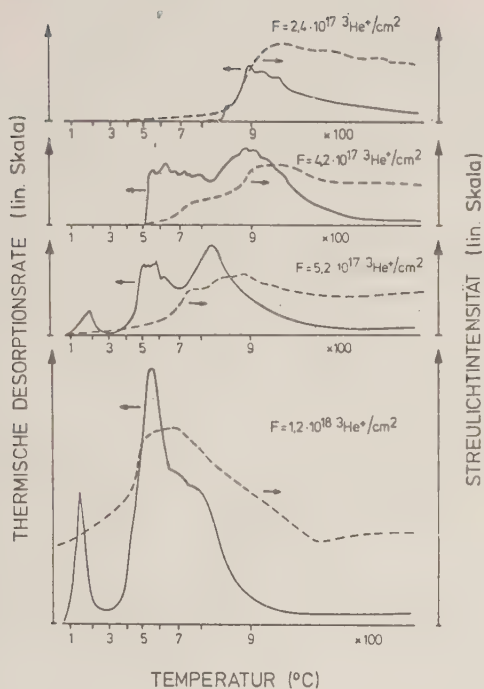


Abb. 30:

Thermische Desorption  
und Oberflächenveränderung  
nach  $40 \text{ keV } ^3\text{He}^+ \xrightarrow{25^\circ\text{C}} \text{Ni(P)}$   
mit den angegebenen  
Fluenzen

Tabelle 1:

|              | 1. Max (°C)  | 2. Max (°C)  |
|--------------|--------------|--------------|
| Polikristall | $152 \pm 11$ | $557 \pm 19$ |
| Einkristall  | $146 \pm 7$  | $554 \pm 15$ |

Es ergibt sich innerhalb der Unsicherheiten Übereinstimmung.

## V.2.2 Thermische Oberflächenveränderung und Tiefenprofile

### a) Oberflächenveränderung

Der Anstieg der Streulichtintensität während der Temperaturerhöhung (Abb. 29, 30) erfolgt im Temperaturbereich zwischen  $700^\circ\text{C}$  und  $900^\circ\text{C}$  zum Teil aufgrund der erhöhten thermischen Strahlung von der Probe im

Wellenlängenbereich des Lasers (Abb. 29 oben links und unten rechts). Diesem Untergrund überlagert sich die Streulichtintensität aufgrund von thermischen Veränderungen der Oberflächenstrukturen, welche man unabhängig von der Probe (P oder E) in drei Gruppen aufteilen kann:

- (i) Nach Beschuß mit unterkritischen Fluenzen ( $F < 5,2 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) beginnt thermische Desorption und Oberflächenveränderung bei etwa derselben Temperatur.
- (ii) Nach Beschuß mit Fluenzen zwischen der kritischen und etwa der, bei der die Blister durch Zerstäubung verändert werden ( $< 4 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) (s.a. V.1.1), erhält man einen Anstieg der Streulichtintensität zwischen  $400^\circ \text{C}$  und  $700^\circ \text{C}$ .
- (iii) Für noch größere Fluenzen können oberflächeninduzierte Streulichtintensitätsveränderungen nicht beobachtet werden.

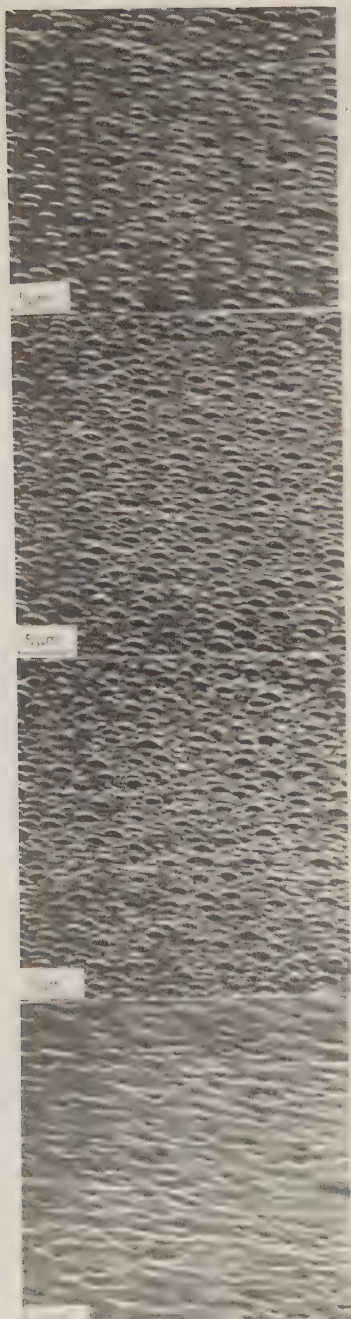
Bei Erwärmung von Proben, die mit unterkritischer Fluenz beschossen wurden, können sogenannte thermische Blister gebildet werden (Abb. 31), die einen größeren Durchmesser besitzen als die durch Beschuß erzeugten. Bei sehr niedrigen Fluenzen ( $< 2 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) erfolgt keine thermische Blisterbildung. Man erhält dann Löcherbildung in der Probenoberfläche ähnlich denen, die man durch Beschuß bei  $720^\circ \text{C}$  erhält (Abb. 27).



Abb. 31:

Thermische Blister durch isochrone Temperung bis  $510^\circ \text{C}$  einer Nickelprobe nach Beschuß mit  $40 \text{ keV } ^3\text{He} \xrightarrow{25^\circ\text{C}} \text{Ni(E)}$  ( $F = 4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ).

Vergleich mit beschußinduzierten Blistern.



$T_{\max}$



250°C

560°C

720°C

950°C

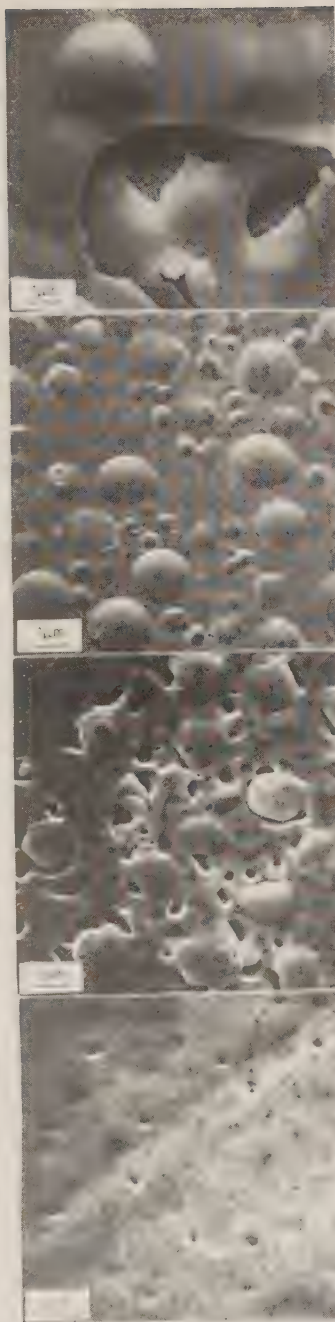
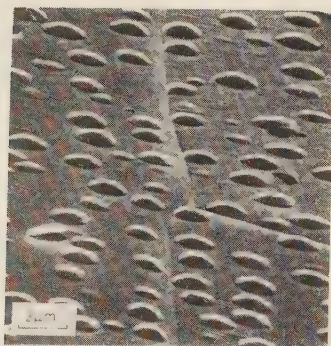
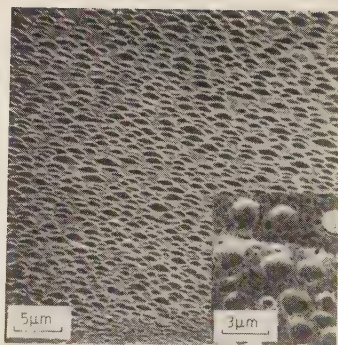


Abb. 32:

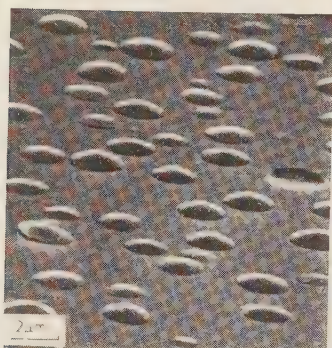
Veränderung der Oberflächenstruktur einer einkristallinen Nickelprobe nach Beschuß mit 40 keV  $^3\text{He}^+$  ( $F = 1.2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ), und anschließender isochroner Temperung bis  $T_{\max}$



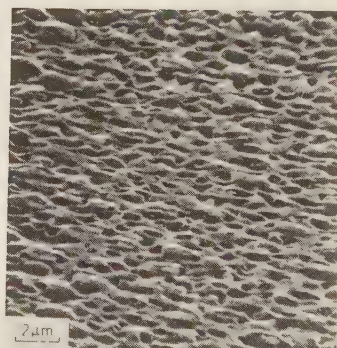
$T_{\max} = 25^{\circ}\text{C}$



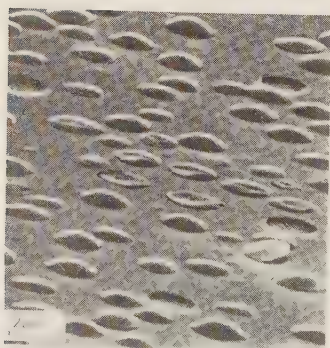
$T_{\max} = 540^{\circ}\text{C}$



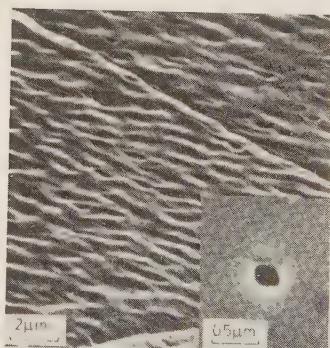
$T_{\max} = 290^{\circ}\text{C}$



$T_{\max} = 750^{\circ}\text{C}$



$T_{\max} = 430^{\circ}\text{C}$



$T_{\max} = 980^{\circ}\text{C}$

Abb. 33: Veränderung der Oberflächenstruktur einer polykristallinen Nickelprobe nach Beschuß mit 40 keV  $^3\text{He}^+$  ( $F = 1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ), und anschließender isochroner Temperung bis  $T_{\max}$

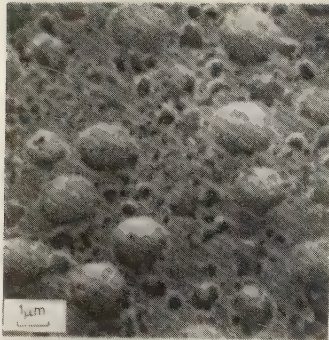
Implantiert man, bis Blister entstanden sind, so erhält man durch isochrone Temperung folgende Veränderungen:

Für 40 keV  $^3\text{He}$ -Beschluß auf Nickel bei Zimmertemperaturen mit einer Fluenz von  $1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  sind die Oberflächenveränderungen in Abb. 32 (Einkristall) und Abb. 33 (Polykristall) für verschiedene Erwärmungstemperaturen dargestellt. Bis zu einer Probentemperatur von etwa  $430^\circ \text{C}$  ergeben sich keine sichtbaren Veränderungen. Bei Temperaturen größer als etwa  $500^\circ \text{C}$  erhält man zunächst eine Verdichtung der Blister sowie Löcherbildung, vorzugsweise an den Blisterrändern und beim Polykristall an Korngrenzen. Bei dieser Temperatur erfolgt im Desorptionsspektrum ein erheblicher Anstieg (Abb. 29,30, Spektren mit  $F = 1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ). Weitere Temperaturerhöhung führt dann zur Auflösung der Blisterstruktur ( $T \gtrsim 700^\circ \text{C}$ ) und Bildung weiterer Löcher. Bei  $950^\circ \text{C}$  sind die Blister verschwunden. Es verbleiben dann nur noch Löcher.

Auf allen Probenoberflächen, die bis zu Temperaturen von mehr als etwa  $550^\circ \text{C}$  erwärmt wurden - entweder während des Beschusses, oder danach - zeigen sich zusätzliche dunkle Kontraststellen auf den REM-Aufnahmen (Abb. 34). Sie sind nur im implantierten Probenbereich zu finden (Abb. 34 b<sub>1</sub>, b<sub>2</sub>), womit Verunreinigungen der Oberfläche ausgeschlossen werden können. Mit Hilfe der Bildentstehung in einem REM kann man jedoch eine Interpretation dieser Erscheinung angeben:

Im REM werden Elektronen mit Primärenergien von typisch einigen keV bis einigen zehn keV auf die Probe geschossen. Von dort gelangen dann Elektronen in einen Elektronendetektor, die man grob in zwei Gruppen unterteilen kann:

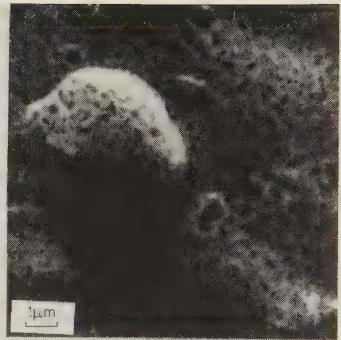
- (a) Niederenergetische Elektronen ( $E \lesssim 50 \text{ eV}$ ) aus oberflächennahen Schichten ( $< 10 \text{ nm}$ ), sogenannte Sekundärelektronen (SE) (Reimer et al. 1973)
- (b) Hochenergetische Elektronen ( $E \leq \text{Primärenergie}$ ), die aus Tiefen  $T$  bis im Bereich von  $\mu\text{m}$  aus der Probe austreten, sogenannte rückgestreute Elektronen (RE) (für Kupfer bei  $E_{\text{primär}} = 30 \text{ keV}$  und senkrechtem Elektroneneinfall auf die Probe ist  $T = 0,59 \mu\text{m}$ ) (Reimer et al. 1973).



RE

(a1)

$T_B = 25^\circ\text{C}$   
 $T_{\text{max}} = 580^\circ\text{C}$



RE

(a2)

$T_B = 580^\circ\text{C}$   
 $T_{\text{max}} = 580^\circ\text{C}$



RE

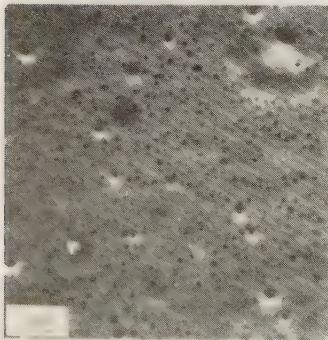
(b1)

$T_B = 25^\circ\text{C}$   
 $T_{\text{max}} = 730^\circ\text{C}$



RE + SE

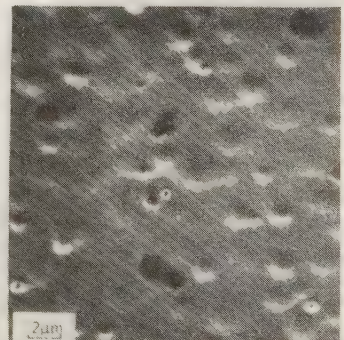
(b2)



$E_{\text{Elektron}} = 30 \text{ keV}$

(c1)

$T_B = 25^\circ\text{C}$   
 $T_{\text{max}} = 950^\circ\text{C}$



$E_{\text{Elektron}} = 5 \text{ keV}$

(c2)

Abb. 34: Kontraststruktur durch Erwärmen beschossener Proben bzw. beim Beschuß erwärmter Proben

Durch die RE enthält das REM-Bild eine zusätzliche Tiefeninformation. Auch ein Teil der SE, die durch RE ausgelöst wurden, trägt dazu bei. Diese können jedoch nicht von den anderen SE unterschieden werden.

Die Tiefeninformation wird deutlicher, wenn man im REM eine Gegenspannung anlegt, die verhindert, daß SE in den Detektor gelangen (Abb. 34,  $b_1$ ,  $b_2$ ). Dadurch werden die dunklen Flecken deutlicher sichtbar.

Andererseits kann man durch Reduzierung der primären Elektronenenergie die Tiefeninformation ebenso reduzieren, sodaß nur Elektronen aus oberflächennahen Schichten in den Detektor gelangen (bei 5 keV primärer Elektronenenergie in Kupfer ist  $T = 0,04 \mu\text{m}$  - Reimer et al.) s. Abb. 34  $c_1$ ,  $c_2$ .

Dadurch verschwinden die dunklen Kontraststellen. Nicht verschwindende Kontraste zeigen, daß die Ursache dafür auf der Oberfläche liegt.

Aus diesen Änderungen kann geschlossen werden, daß die dunklen Flecken wahrscheinlich Hohlräume unter der Oberfläche ( $\gtrsim 40 \text{ nm}$ ) sind. Im Gegensatz zu offenen Löchern erhält man aus der darüberliegenden Oberflächenschicht noch eine meßbare Elektronenintensität, die jedoch schwächer ist als die von kompaktem Material und somit den Kontrast im Vergleich zu offenen Löchern reduziert.

Die obige Schlußfolgerung wird qualitativ unterstützt durch die Veränderung der Kontraststruktur im REM-Bild, wenn der primäre Elektronenstrahl die Oberfläche unter flachem Winkel trifft.

In Abb. 32 ist für die linke Hälfte der Winkel zwischen Probennormale und primärem Elektronenstrahl  $70^\circ$  und auf der rechten  $30^\circ$ . Links erkennt man die dunklen Kontraststellen nicht (u.a. auf der Abbildung mit  $T_{\text{max}} = 950^\circ \text{ C}$ , da einerseits die SE-Ausbeute ansteigt ( $> \text{Faktor } 2$  für Cu bei 30 keV primärer Elektronenenergie), und andererseits die Projektion von T auf die Normale kleiner wird, die Tiefeninformation also aus geringeren Tiefen erhalten wird.

## b) Tiefenprofile

Die Veränderung des implantierten Tiefenprofils durch den Erwärmungsprozeß zeigt Abb. 35. Die Skizze gibt die Temperaturen wieder, bei denen die Desorption unterbrochen wurde, um das Tiefenprofil zu messen.

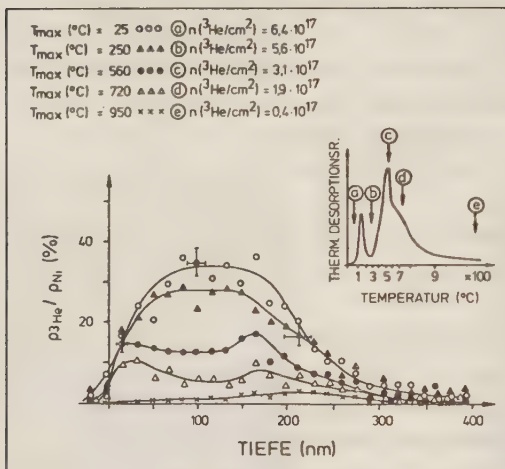


Abb. 35:

Änderung der Tiefenprofile einer mit

40 keV  $^3\text{He}^{+25^{\circ}\text{C}}$   $\rightarrow$  Ni(E)

beschossenen Probe, durch isochrone Temperierung bis zu den angegebenen Temperaturen  $T_{\max}$

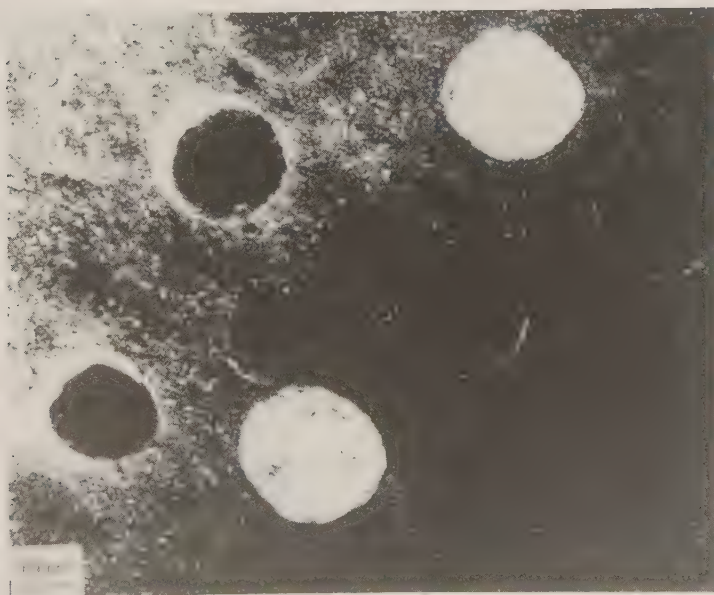
Danach wurde bis zur nächsten angegebenen Temperatur erwärmt. Es zeigte sich dabei, daß die Desorption erst dann wieder einsetzt, wenn die zuerst erreichte Temperatur überschritten worden ist.

Bei einer Temperatur von  $950^{\circ}\text{C}$  bleibt noch ein Rest von  $0,4 \times 10^{17} \text{ He}/\text{cm}^2$  in der Probe zurück, der unabhängig von der Fluenz und der Erwärmungsdauer ist, und etwa mit dem Betrag der Fluenz ( $\sim 0,5 \times 10^{17} \text{ He}^{+}/\text{cm}^2$ ) übereinstimmt, bei der bei nachfolgender Erwärmung bis etwa  $1000^{\circ}\text{C}$  keine Desorption erfolgt (siehe V.2.1). Wie auch beim Beschuß bei höheren Temperaturen (V.2.1), verbreitern sich die Profile nicht. Die Desorption von Helium erfolgt bei jedem Desorptionsschritt aus der gesamten implantierten Tiefe.



$T_{\max} = 25^{\circ}\text{C}$

(a)



$T_{\max} = 250^{\circ}\text{C}$

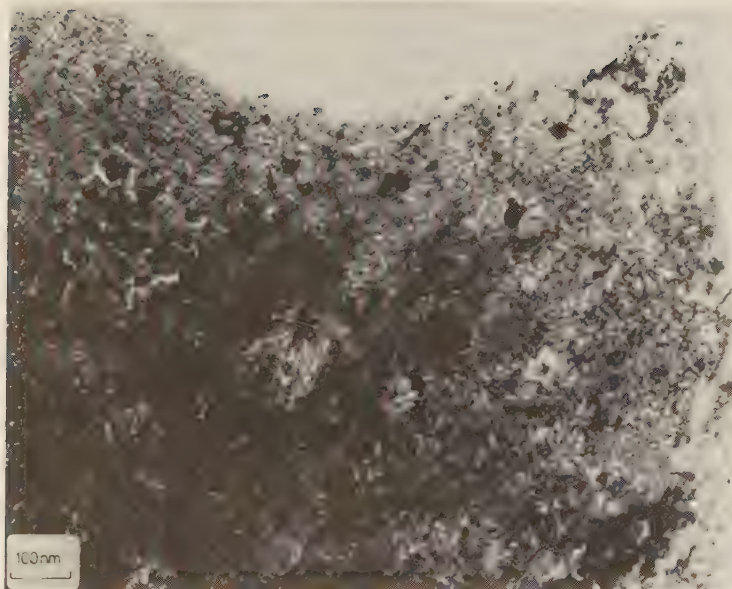
(b)

Abb. 36: TEM-Aufnahmen nach Beschuß von:

$40 \text{ keV } {}^3\text{He} \xrightarrow{250^{\circ}\text{C}} \text{Ni}$  ( $F = 6,8 \times 10^{18} \text{ He}^{+}/\text{cm}^2$ )

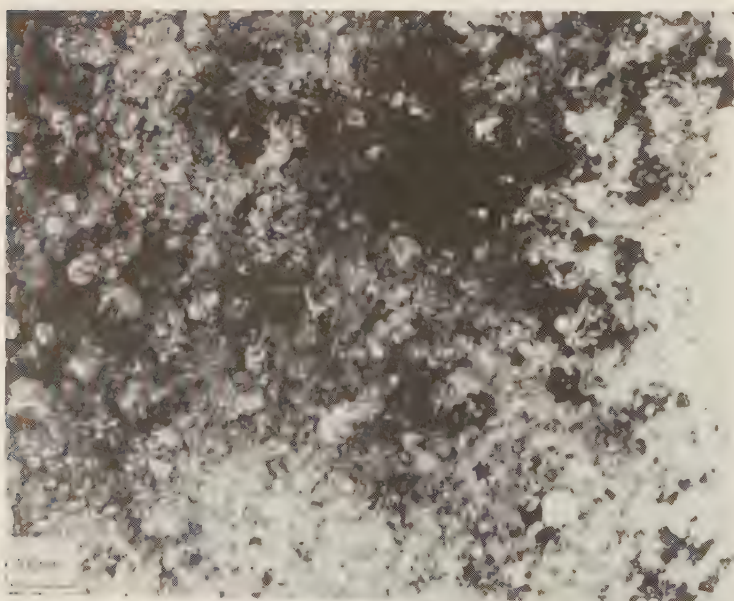
a) nicht erwärmte Probe

b) bis  $250^{\circ}\text{C}$  erwärmte Probe (nach dem Beschuß)



$T_{\max} = 25^{\circ}\text{C}$

a)



$T_{\max} = 250^{\circ}\text{C}$

b)

Abb. 37: TEM-Aufnahmen nach Beschuß von  
40 keV  $^3\text{He} \rightarrow \text{Ni}$  ( $F = 6,8 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ )  
a) nicht erwärmte Probe  
b) bis  $250^{\circ}\text{C}$  erwärmte Probe (nach dem Beschuß)

### V.2.3 TEM-Untersuchungen

Da im Temperaturbereich bis  $300^{\circ}\text{C}$ , in dem das erste Desorptionsmaximum von mit überkritischer Fluenz beschossenen Proben registriert wird, keine Oberflächenveränderungen festgestellt werden, wurden zwei Proben mit Hilfe eines TEM von Dr. Jäger in der KFA Jülich untersucht. Beide waren mit einer Fluenz von  $6,8 \times 10^{18} \text{ }^3\text{He}^{+}/\text{cm}^2$  ( $40 \text{ keV}$ ) bei Zimmertemperatur beschossen worden; eine davon wurde danach bis  $250^{\circ}\text{C}$  erwärmt.

Abbildung 36 zeigt die beiden Proben mit der geblisterten Oberfläche. Große weiße runde Flächen sind Löcher an Stellen, an denen vor dem Präparationsprozeß (Ätzung von der Rückseite her, um für Elektronen durchstrahlbare Flächen zu schaffen) Blister vorhanden waren. In den Abb. 36 a) und b) sind vor allem im Zwischenblisterbereich Blasen zu erkennen, die in Abb.37 stärker vergrößert dargestellt sind. Die Blasen in (a) sind im Durchschnitt kleiner als die in (b). Es hat also während der Temperung Blasenwachstum stattgefunden. In beiden Fällen ist eine facettierte Blasenstruktur erkennbar.

### V.2.4 Abhängigkeit der thermischen Desorption von der Implantations-temperatur

Um zu untersuchen, wie sich die thermische Desorption verändert, wenn bei Temperaturen implantiert wird, bei denen im Desorptionsspektrum nach Zimmertemperaturbeschuß jeweils ein Desorptionsmaximum überschritten ist, wurde mit einer Fluenz von  $1,2 \times 10^{18} \text{ He}^{+}/\text{cm}^2$  bei höheren Temperaturen ( $T_B$ ) implantiert. Diese sind durch die Punkte a, b, c in dem Desorptionsspektrum markiert, welches man nach Zimmertemperaturbeschuß ( $T_B = 25^{\circ}\text{C}$ ) erhält (Abb. 38). Die Proben wurden nach der Implantation auf etwa  $50^{\circ}\text{C}$  langsam abgekühlt ( $0,5 - 3 \text{ Std.}$ ) und von dieser Temperatur aus dann erwärmt. Dabei zeigt sich zwischen Einkristall und Polykristall kein Unterschied. Die Desorption beginnt für  $T_B = 270^{\circ}\text{C}$  und  $T_B = 540^{\circ}\text{C}$  bei der Temperatur, bei der auch die Implantation erfolgte. Für  $T_B = 750^{\circ}\text{C}$  ist der Desorptionsbeginn etwas zu kleineren Temperaturen ( $\sim 700^{\circ}\text{C}$ ) verschoben.

Die thermische Heliumfreisetzung nach Beschuß mit überkritischen Fluenzen beginnt also immer in der Umgebung (etwa  $\pm 50^{\circ}\text{C}$ ) von der Temperatur, bei der auch die Implantation stattgefunden hat.

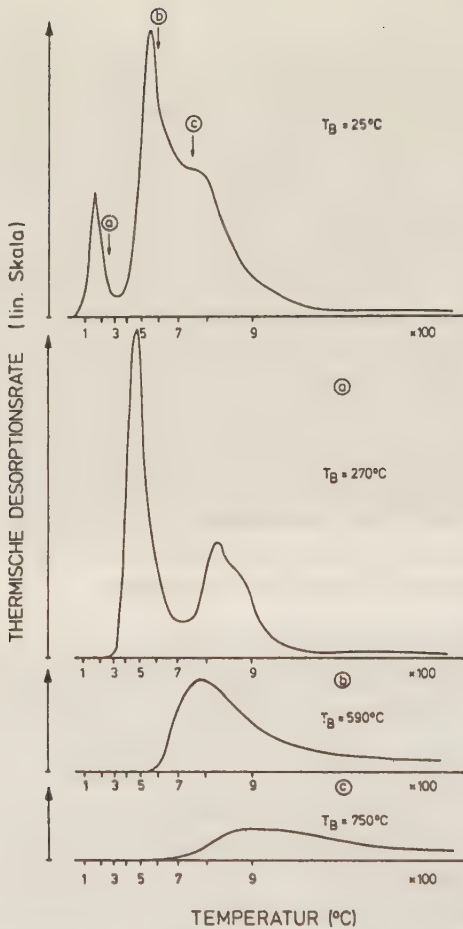


Abb. 38:

Thermische Desorption aus Nickelproben (E), die mit  $40 \text{ keV } ^3\text{He}$  bei den angegebenen Temperaturen ( $T_B$ ) beschossen wurden ( $F = 1,2 \cdot 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ )

### V.2.5 Abhängigkeit der thermischen Desorption von der Beschußenergie und thermische Oberflächenveränderung

Die Desorptionsspektren nach Beschuß mit 90 und 150 keV (Abb.39) ( $T_B = 25^\circ \text{C}$ ,  $F = 1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) besitzen eine ähnliche Form wie nach Implantation mit 40 keV ( $F = 1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ).

Das erste Maximum wird bei den höheren Beschußenergien kleiner, und die Trennung der beiden Maxima ist ebenfalls geringer. Einen Vergleich der Maximatemperaturen gibt Tabelle 2.

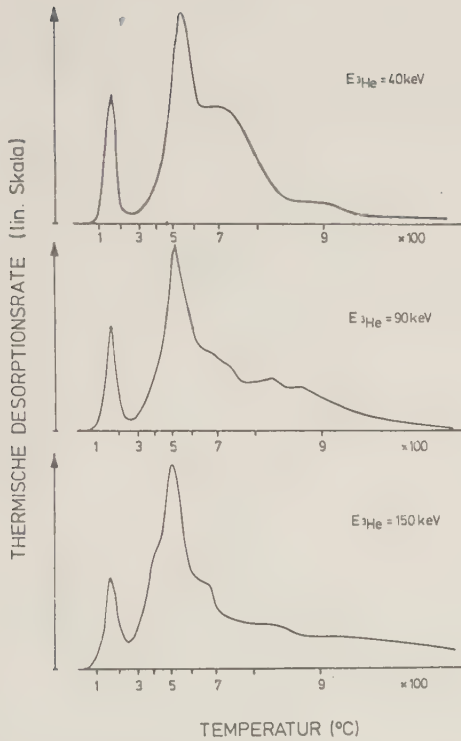


Abb. 39:

Thermische Desorptionsspektren nach Beschuß von Nickelproben (E) bei Zimmertemperatur mit Helium der angegebenen Energien

$$(F = 1,2 \cdot 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2)$$

Tabelle 2:

| Energie (keV) | 1. Max. (°C) | 2. Max. (°C) | Anzahl der Messungen |
|---------------|--------------|--------------|----------------------|
| 40            | $146 \pm 7$  | $554 \pm 15$ | 7                    |
| 90            | $148 \pm 6$  | $523 \pm 4$  | 3                    |
| 150           | $153 \pm 3$  | $480 \pm 13$ | 3                    |

Im Temperaturbereich größer  $900^{\circ} \text{C}$  wird bei höheren Energien die Desorptionsrate etwas größer. Beschießt man mit unterkritischer Fluenz und 150 keV Ionenenergie (Abb.40), so verschwindet das Desorptionsmaximum bei  $150^{\circ} \text{C}$  im Desorptionsspektrum genauso wie beim Beschuß mit 40 keV mit unterkritischer Fluenz.

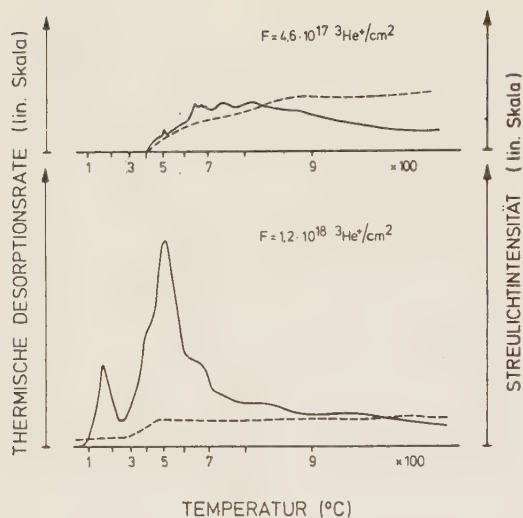


Abb. 40 :

Thermische Desorption  
und Oberflächenver-  
änderung bei der  
Temperung von Ni-Proben  
nach:

150 keV  $^3\text{He}^+ \xrightarrow{250^\circ\text{C}}$  Ni(E)

$4,6 \times 10^{17} \text{ } ^3\text{He}^+/\text{cm}^2 <$

$< F_{\text{krit}} < 1,2 \cdot 10^{18} \text{ } ^3\text{He}^+/\text{cm}^2$

Gleichzeitig mit dem Beginn der Heliumdesorption setzt auch hier die Oberflächenveränderung ein. Man erhält auch hier thermische Blister (Abb. 41), die jedoch erheblich größer sind als nach Beschuß mit 40 keV und auch bei Temperaturen von  $950^\circ\text{C}$  nicht verschwinden.

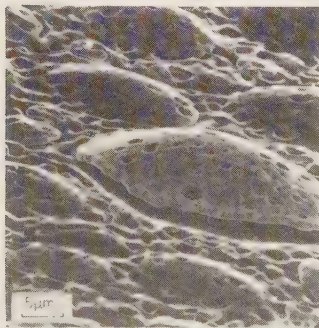


Abb. 41: Thermische Blister nach isochroner Temperung:

150 keV  $^3\text{He}^+ \xrightarrow{250^\circ\text{C}}$  Ni(E)  
 $F = 4,6 \cdot 10^{17} \text{ } ^3\text{He}^+/\text{cm}^2$   
 $T_{\text{max}} = 950^\circ\text{C}$

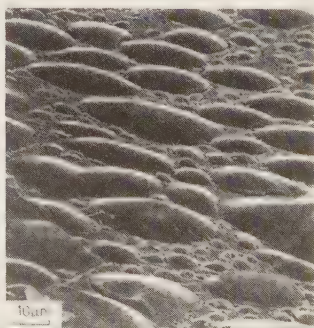


Abb. 42: Probenoberfläche nach isochroner Temperung.

150 keV  $^3\text{He}^+ \xrightarrow{250^\circ\text{C}}$  Ni(E)  
 $F = 1,2 \cdot 10^{18} \text{ } ^3\text{He}^+/\text{cm}^2$   
 $T_{\text{max}} = 950^\circ\text{C}$

Die Temperung mit überkritischer Fluenz und einer Energie von 150 keV beschossener Proben (Abb. 42) erzeugt ebenfalls thermische Blister. Diese bilden sich zwischen den während der Implantation gebildeten Blistern.

Im Kapitel II, Abschnitt 5, wurde dargestellt, daß Blisterbildung verhindert werden kann, wenn eine der dafür notwendigen Bedingungen nicht erfüllt ist. Dazu gehört, daß die kritische Konzentration in der Heliumtiefenverteilung zuerst an der Oberfläche erreicht wird. Dies kann erreicht werden, wenn nach der in Tabelle 3 angegebenen Reihenfolge Helium in Nickel implantiert wird (nach Roth et al. 1980).

Tabelle 3:

|    | Energie (keV) | Fluenz ( $\text{He}^+/\text{cm}^2$ ) |
|----|---------------|--------------------------------------|
| 1. | 0.25          | $3.1 \times 10^{15}$                 |
| 2. | 0.5           | $4.4 \times 10^{15}$                 |
| 3. | 1             | $7.5 \times 10^{15}$                 |
| 4. | 2             | $1.5 \times 10^{16}$                 |
| 5. | 4             | $3.3 \times 10^{16}$                 |
| 6. | 8             | $3.0 \times 10^{17}$                 |

Eine so bei Zimmertemperatur implantierte Probe ist danach getempert worden. Das thermische Desorptionsspektrum zeigt Abb.43.

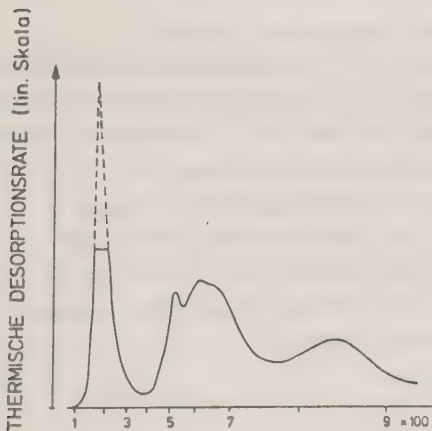


Abb. 43:

Thermisches Desorptionsspektrum einer nach Tabelle 3 bei Zimmertemperatur implantierten Probe

Die gestrichelte Fortsetzung des ersten Desorptionsmaximum ist eine Extrapolation, da dort der Ionenstromverstärker des Massenspektrometers übersteuerte.

Man erkennt hier wieder eine ähnliche Form des Spektrums wie bei monoenergetischem und überkritischem Beschuß. Besondere Ähnlichkeit zeigt sich beim Vergleich mit dem Spektrum nach 40 keV Beschuß mit hoher Fluenz ( $1.4 \times 10^{19} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ , Abb. 29).

Implantation von Helium kann auch - wie in II.5. ausgeführt - zur Flakebildung führen, also dem Abschälen von großen Flächen auf dem Beschußfleck.

Dies kann erreicht werden durch Beschuß mit hohen Energien und hohen Stromdichten, was zur Folge hat, daß damit die Beschußtemperatur der Probe ansteigt.

Eine mit 150 keV Heliumionen und einer Stromdichte von  $600 \text{ } \mu\text{A}/\text{cm}^2$  beschossene Probe ( $T_B = 165^\circ \text{ C}$ ,  $F = 1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) zeigt Abb. 44 ( $Z = 0$ ). Man erkennt einen typischen Flake.

Durch Temperung entsteht dann das in Abb. 45 gezeigte thermische Desorptionsspektrum. Es zeigt sich auch hier wieder daß in V.2.4 gefundene Verhalten, daß die thermische Desorption in der Umgebung der Beschußtemperatur erfolgt. Zudem ist die Form des Spektrums in Abb. 45 ähnlich dem in Abb. 38b, nur etwas zu niederen Temperaturen verschoben.

Die Oberflächenveränderung durch Temperung ist ebenfalls in Abb. 44 dargestellt. Die Zahl  $Z$  dort gibt die Anzahl der isochronen Temperungen an, die bei der abgebildeten Probe jeweils durchgeführt wurden. Diese erfolgten jeweils von Zimmertemperatur bis etwa  $950^\circ \text{ C}$  innerhalb von 5 Minuten. Einmalige Temperung ( $Z = 1$ ) bewirkt das Ausgasen und damit das Desorptionsspektrum in Abb. 45 sowie Löcherbildung in den Flakes. Die darunter liegende Schicht weist nur sehr vereinzelt Löcher auf. Kühlt man die Probe ab und tempert dann erneut ( $Z = 2$ ,  $Z = 3$ ), so erfolgt kein weiteres Ausgasen. Die Löcher in den Flakes wachsen jedoch und die gesamte Struktur beginnt sich aufzulösen.

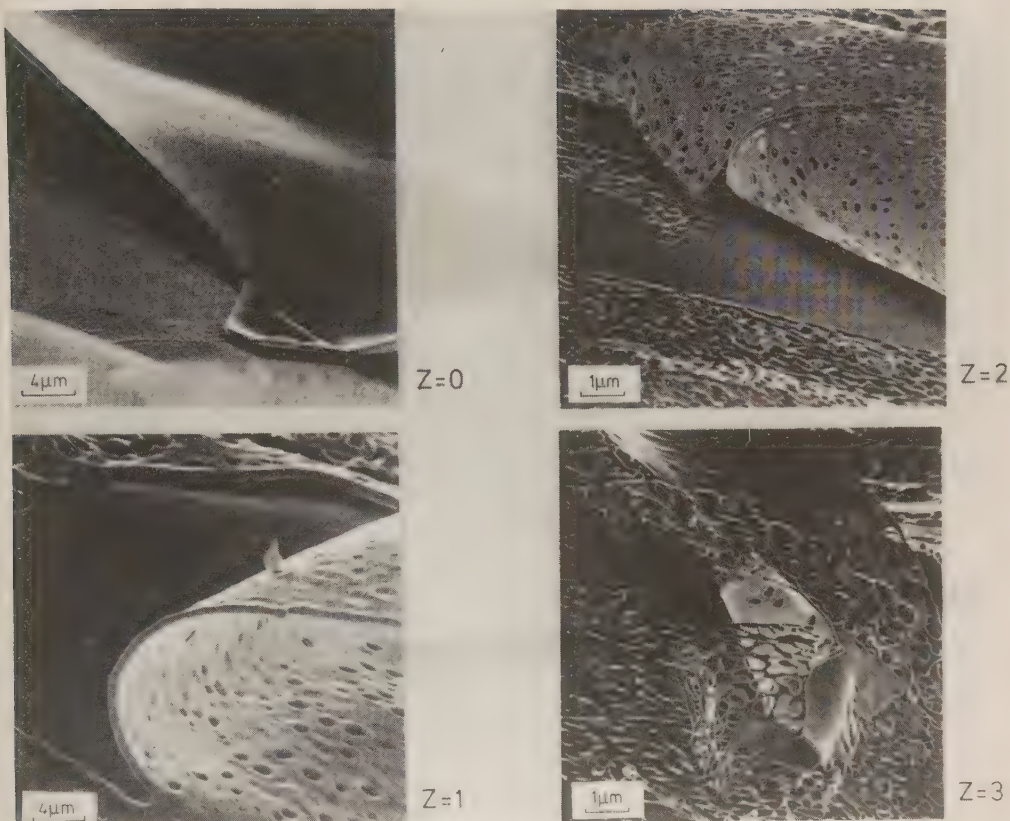


Abb. 44: Flaking ( $Z = 0$ ) nach Beschuß mit  $150 \text{ keV } ^3\text{He}^+ \xrightarrow{160^\circ\text{C}} \text{Ni(E)}$  und thermische Oberflächenveränderung durch ein- ( $Z=1$ ), zwei- ( $Z=2$ ) und dreimaliges ( $Z=3$ ) isochrones Tempern

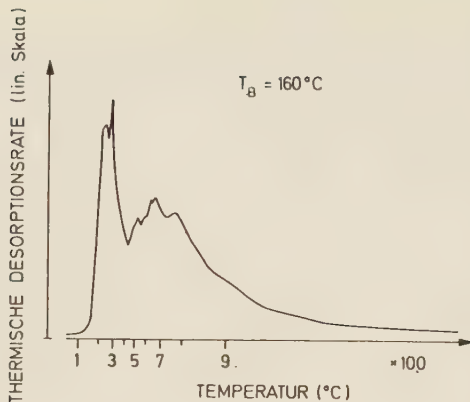
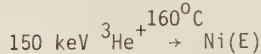


Abb. 45:

Thermische Desorption nach



### V.3. Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse

- 1) Beim Beschuß von Nickel mit Helium im Energiebereich von 20 bis 150 keV und bei Temperaturen von  $25^\circ\text{C}$  bis  $950^\circ\text{C}$  setzt gleichzeitig ( $\Delta t \sim 10 \text{ s}$ ) mit dem Beginn verstärkter Heliumreemission auch Oberflächenveränderung ein.
- 2) Die Reemissionsrate und die Oberflächenveränderung als Funktion der Heliumfluenz ist temperaturabhängig.
- 3) Die kritische Fluenz für den Beginn der verstärkten Reemission und der (gleichzeitigen) Oberflächenveränderung ist ebenfalls temperaturabhängig.
- 4) Blisterbildung kann sowohl während der Implantation durch Beschuß mit überkritischen Fluenzen erfolgen, wie auch durch isochrone Temperung nach Beschuß mit unterkritischer Fluenz (thermische Blister).
- 5) Die Heliumreemissionsrate und die Oberflächenveränderung während der Implantation sind korreliert.

- 6) Beim Beschuß mit 40 keV Heliumionen wird bei der kritischen Fluenz eine maximale lokale Heliumkonzentration von ca. 40 % bei der häufigsten Reichweite erreicht. Weiterer Beschuß reduziert dieses lokale Konzentrationsmaximum und führt zu einer Verbreiterung des Tiefenprofils, bis eine Sättigung mit Helium von ca. 30 % über die gesamte Reichweite erreicht ist.
- 7) Desorbiert man thermisch Helium aus einer bei Zimmertemperatur mit 40 keV Helium beschossenen Nickelprobe, so zeigen sich in Abhängigkeit von der Fluenz zwei wesentliche Veränderungen:
  - a) Für eine Fluenz, die kleiner als etwa  $5 \times 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  ist, desorbiert bis  $1000^\circ \text{C}$  kein Helium.  
Bis zur kritischen Fluenz verschiebt sich der Beginn der Desorption zu niederen Temperaturen
  - b) Ab der kritischen Fluenz erhält man bei  $150^\circ \text{C}$  ein zusätzliches Desorptionsmaximum. Eine Verschiebung findet nicht mehr statt.
- 8) Die prinzipielle Form der Desorptionsspektren hängt wenig von der Beschußenergie ab, jedoch sehr von der Beschußtemperatur.
- 9) Das Tiefenprofil des implantierten Heliums verbreitert sich nicht bei Temperaturerhöhung.
- 10) Isochrone Temperung bis  $300^\circ \text{C}$  beschossener Proben führt zu keiner sichtbaren Oberflächenveränderung. Es findet jedoch Blasenwachstum statt.
- 11) Temperung zu Temperaturen über  $300^\circ \text{C}$  verursacht thermische Oberflächenveränderung (thermische Blister, Löcher).
- 12) Ein- und polykristallines Nickel zeigen bei Zimmertemperaturbeschuß bis zu einer Fluenz von etwa  $1,5 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  Unterschiede im Heliumreemissionsverhalten und in der Blisterbildungsrate. Bei höheren Fluenzen ( $> 3 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) sowie bei höheren Beschußtemperaturen ist ein Unterschied nicht erkennbar. Dies gilt auch für das Verhalten bei isochroner Temperung nach der Implantation.

## VI. Diskussion der Ergebnisse

### VI.1. Aufsammeln, Heliumreemission und Blisterbildung

In diesem Abschnitt wird das Aufsammeln und die Heliumreemission mit einer darüber bestehenden Modellvorstellung verglichen und die Auswirkungen der daraus entstehenden Ergebnisse auf die Blisterbildungsmodelle werden diskutiert. Am Schluß werden die experimentellen Ergebnisse in ein erweitertes Blistermodell eingebracht.

#### VI.1.1 Aufsammeln und Reemission

Der Anteil der Heliumreemission von der pro Zeiteinheit eingeschossenen Heliummenge vor dem Erreichen der kritischen Fluenz beträgt im Mittel 3,7 %. Dieser Anteil bleibt zunächst konstant und entspricht dem zu erwartenden Reflexionskoeffizienten von 40 keV He an Nickel (Eckstein et al., 1979). Erst bei der kritischen Fluenz setzt erhöhte Heliumreemission ein.

Dies weist darauf hin, daß die thermische Diffusion des Heliums aus der Probe heraus unterhalb der kritischen Fluenz sehr gering ist (kleiner als der reflektierte Anteil). Die Messung der Tiefenprofile zeigt auch, daß die implantierte Heliumverteilung bei konstanter Temperatur sich zeitlich nicht verändert.

Qualitativ das gleiche Verhalten der Reemission findet man für die Heliumimplantation in Nickel mit einer Energie von 4 keV (Pontau et al. 1980) sowie mit 300 keV Helium auf Edelstahl (316 SS), Molybdän und Vanadium (Bauer und Thomas 1974).

Damit unterscheidet sich die Heliumreemission erheblich von der von Wasserstoff aus einigen Metallen während der Implantation bei Raumtemperatur. Hier erhält man eine mit der Fluenz monoton ansteigende Reemissionsrate, bis Sättigung der Probe erreicht ist (Bauer und Thomas, 1974). Erst bei tiefen Temperaturen (für Molybdän bei  $-110^{\circ}\text{C}$ , Schulz, 1981), bei denen die Diffusion klein wird, ist das Reemissionsverhalten ähnlich wie bei Heliumbeschuß.

Für das Aufsammeln von Helium oder Wasserstoff (bei niederen Temperaturen) während der Implantation existieren mehrere Modelle, (Hotsten 1980, Braganza et al. 1978, Staudenmaier et al. 1979, Cohen und McCracken 1979, Doyle et al. 1980, Erents et al. 1978, Schulz 1981), mit deren Hilfe Aufsammelkurven ähnlich wie die in Abb. 22 berechnet werden können.

Als einziges dieser Modelle verwendet das von Staudenmaier et al., Cohen und McCracken und Doyle et al. ausschließlich experimentell direkt zugängliche Parameter. Bei den anderen Modellen erhält man bis zu drei freie Parameter (Braganza 1978), um die theoretische Kurve den experimentellen Daten anzupassen. Aus diesem Grund wird dieses Modell hier zum Vergleich herangezogen.

Folgende Voraussetzungen trifft das Modell über den Aufsammel- und Reemissionsprozeß (Abb. 46):

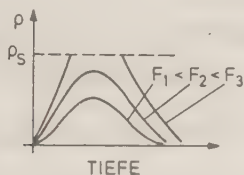


Abb. 46: , s. Text

$F$  = Fluenz

$\rho$  = He-Konzentration

- a) Es wird eine der Ionenreichweite angepaßte Tiefenverteilung vorausgesetzt.
- b) Durch den Beschuß wächst diese Verteilung. Solange an keiner Stelle eine Sättigungskonzentration  $\rho_s$  erreicht wird, wird alles nicht kinematisch reflektierte Gas aufgesammelt.
- c) Wird irgendwo im Tiefenprofil  $\rho_s$  erreicht, so wird dort nicht weiter aufgesammelt, und die an dieser Stelle zur Ruhe kommenden Heliumatome werden - ohne woanders aufgesammelt zu werden - reemittiert. Dort, wo  $\rho$  noch kleiner als  $\rho_s$  ist, wird weiterhin aufgesammelt.
- d) Sättigung ist dann erreicht, wenn über die gesamte Reichweite eine gleichmäßige Konzentration  $\rho_s$  aufgebaut worden ist.

Dieses Modell trifft also keine Aussagen über den atomistischen Auf-  
sammel- und Reemissionsprozeß (Bindungsenergien, Aufsammlzentren).  
Nach Messungen von Schulz (1981) an mit Helium und Deuterium implantier-  
tem Molybdän wird Reemission verursacht durch strahlungsinduzierte  
Diffusion sowie Platzwechselvorgänge zwischen eingelagerten und neu hin-  
zukommenden Gasatomen, wenn die Probe fast vollständig gesättigt ist.

Das Modell beschreibt jedoch die beobachtete Entwicklung der Tiefen-  
profile während des Beschusses. Für die Implantation von 40 keV Helium  
in Nickel bei Zimmertemperatur wurden nach diesem Modell die Aufsamml-  
kurven berechnet (Möller 1981). Mit  $\rho_s = 0,3 \rho_{Ni}$  und  $\rho_s = 0,4 \rho_{Ni}$  ist  
in Abb. 47 das Ergebnis für eine angenommen gaußförmige Tiefenverteilung  
( $R_p = 148 \text{ nm}$ , HWB 83 nm) dargestellt. Es zeigt sich für  $\rho_s = 0,3 \rho_{Ni}$   
eine bessere Anpassung.

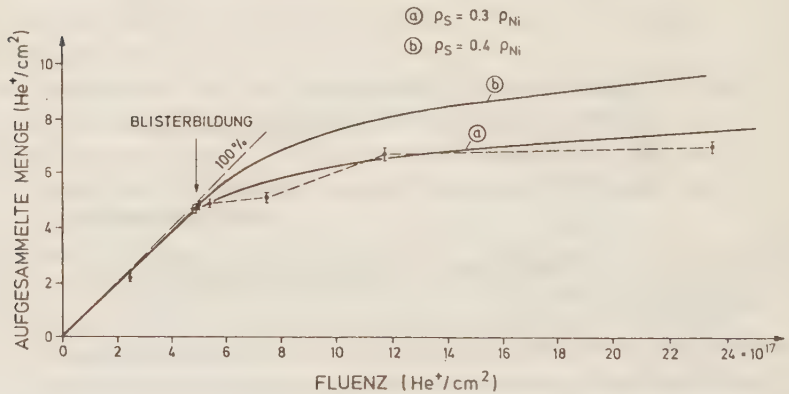


Abb. 47: Vergleich zwischen den experimentellen ( $\circ$ ) und theoretischen  
Aufsammelkurven (s. Text) für 40 keV  ${}^3\text{He} \rightarrow {}^{250}\text{C}$  Ni

Die Abweichungen von den Messungen werden jedoch deutlicher, wenn man aus  
diesen Kurven die Reemissionsratenkurven berechnet. Man erhält sie, in-  
dem die Aufsammlkurve (T) differenziert und von eins subtrahiert wird:

$$\left( \frac{\dot{N}_{\text{Reem}}}{\dot{N}_{\text{ein}}} \right) = \left( 1 - \frac{dT}{dF} \right)$$

In Abb. 48 sind die theoretischen Reemissionsratenkurven zusammen mit einigen experimentellen Kurven aufgetragen. Dabei wurde auf die mittlere kritische Fluenz ( $5,2 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) normiert.

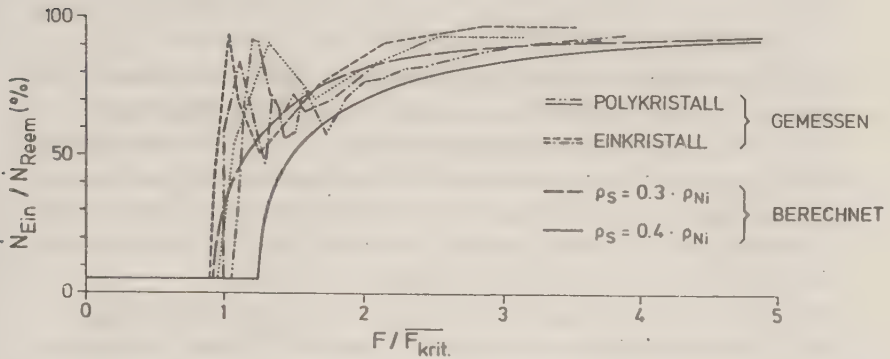


Abb. 48: Vergleich zwischen experimentellen und theoretischen Reemissionsraten

Es zeigt sich:

- (i) Im Bereich  $F / \overline{F}_{\text{krit.}} \lesssim 2$  gibt das Modell den experimentellen Reemissionsratenverlauf ähnlich wieder. Die Anpassung an die Kurve mit  $\rho_S = 0,3 \cdot \rho_{\text{Ni}}$  ist besser als die mit  $\rho_S = 0,4 \cdot \rho_{\text{Ni}}$
- (ii) Im Bereich  $F / \overline{F}_{\text{krit.}} \gtrsim 2$  treten erhebliche Abweichungen auf.

Der Grund für (i) liegt darin, daß im Experiment ebenso wie im Modell die Flanken des Tiefenprofils nach und nach bis zur Sättigungskonzentration  $\rho_S = 0,3 \cdot \rho_{\text{Ni}}$  angehoben werden.

Der Unterschied in der kritischen Fluenz zwischen Modell ( $0,4 \cdot \rho_{\text{Ni}}$ ) und Experiment ergibt sich aus der vorausgesetzten Tiefenverteilung, die im Experiment nicht streng gaußförmig ist. Das Modell kann zusätzlich - wie auch alle anderen - kein Reemissionsratenmaximum beschreiben. Dieses Reemissionsratenmaximum steht jedoch, wie in V.1 dargestellt, im Zusammenhang mit der Blisterbildung. Damit kann eine mög-

liche Erklärung des Reemissionsmechanismus angegeben werden, die die Abweichungen vom Modell verständlich machen. Im folgenden wird dies diskutiert.

### VI.1.2 Heliumreemission und Blisterbildung

Abgesehen davon, daß die Modellvorstellung ab der kritischen Fluenz eine monoton steigende Reemissionsrate ergibt, die das Experiment nicht zeigt, macht sie, wie oben erwähnt, explizit keine Aussage über den Mechanismus, der zur Heliumreemission führt. Nimmt man an, daß das Helium aus dem zuerst gesättigten Bereich bei der häufigsten projizierten Reichweite  $R_p$  zur Oberfläche wandert, so muß es durch Schichten, die noch nicht gesättigt sind, ohne dort aufgesammelt zu werden.

Andererseits wird jedoch noch Helium durch die Implantation dort angelagert. Dieses Verhalten wird verständlich, wenn man annimmt, daß Helium aus einer Tiefenzone, in der bereits Sättigung erreicht ist, über ein System von Kanälen oder Rissen die Oberfläche erreichen kann. Da verstärkte Heliumreemission und Blisterbildung in allen Experimenten gleichzeitig ( $\Delta t \lesssim 1$  s) einsetzen, ist es sinnvoll, anzunehmen, daß Helium an aufgebrochenen oder rissigen Blistern emittiert wird.

Um festzustellen, ob allein Helium aus der Blisterfläche die Reemission im Bereich des ersten Reemissionsratenmaximums verursachen kann, wird die Helium reemittierende Fläche der Probe nach folgender Methode aus sechs verschiedenen Reemissionsmessungen berechnet:

Es wird angenommen, daß jeder neu gebildete Blister die gesamte Heliummenge  $G_B$ , die in seiner Fläche  $A_B$  aufgesammelt ist, auf einmal abgibt:

$$G_B = \bar{n} \cdot A_B$$

und nur dadurch Helium freigesetzt wird.

$\bar{n}$  ist die mittlere in die Blisterfläche implantierte Heliumkonzentration ( $\text{He}/\text{cm}^2$ ).

Da die Blister nicht alle gleichzeitig gebildet werden, müßte die Heliumkonzentration streng genommen noch von der Zeit (bzw. Fluenz) abhängen.

Als Näherung dafür wird angenommen, daß jeder Blister im Mittel die

Heliumkonzentration enthält, die auf folgende Art und Weise bestimmt wird:

Es wird bei der zu untersuchenden Messung die Fluenz gesucht, die in der Mitte zwischen der kritischen und der höchsten geschossenen Fluenz liegt. Dann nimmt man an, daß bis zu dieser mittleren Fluenz das Helium bis auf den reflektierten Anteil aufgesammelt wird.

Die so ermittelte Heliumkonzentration  $\bar{n}$  ist dann abhängig von der Fluenz, bis zu der implantiert wurde.

Die Anzahl der Blister  $Z_i$ , die in einem Zeitintervall (bzw. Fluenzintervall)  $\Delta t_i$  gebildet werden, ist:

$$Z_i = \frac{R_i \cdot \dot{N}_{\text{ein}} \cdot \Delta t_i}{G_B}$$

$$\text{mit } R_i = \dot{N}_{\text{Reem}} / \dot{N}_{\text{ein}}$$

$R_i$  kann aus dem Vielkanalspektrum für jeden Kanal erhalten werden.  $\Delta t_i$  entspricht dem Zeitintervall dieses Kanals und ist bei konstantem Ionenstrom konstant ( $= \Delta t$ ).

Für die gesamte Blistermenge, die zwischen der kritischen Fluenz (Kanal 1) und dem Implantationsende (Kanal k) gebildet werden, gilt dann:

$$Z = \sum_{i=1}^k \frac{R_i \cdot \dot{N}_{\text{ein}} \cdot \Delta t}{G_B}$$

Die gesamte Blisterfläche  $B_R$  ist damit:

$$B_R = Z \cdot A_B = \sum \frac{R_i \cdot \dot{N}_{\text{ein}} \cdot \Delta t}{\bar{n}}$$

Dies wird verglichen mit der auf der Probe gemessenen Blisterfläche  $B_g$ .  $B_g$  erhält man, indem an jeweils drei verschiedenen Stellen des geblisterten Beschußfleckes Photographien mit Hilfe des Lichtmikroskops gemacht werden, um davon die Blister abzuzählen. Der Mittelwert der Blisterzahl  $Z_g$  wird dann über die gesamte Fläche des Beschußfleckes extrapoliert und mit der mittleren Fläche der Blister (nach Abb.20) multipliziert. Daraus erhält man dann  $B_g$ :

$$B_g = Z_g \cdot A_B$$

Als obere Grenze für die Unsicherheit von  $B_g$  kann ein Wert von  $\pm 30\%$  aus der Unsicherheit von  $Z_g$  und  $A_B$  abgeschätzt werden.

Für die Unsicherheit von  $B_R$  geht der Fehler der Reemissionsratenskala ( $R_i$ ), ( $\pm 20\%$ ) und der Fluenz ( $\pm 15\%$ ) ein. Das Produkt  $N_{\text{ein}} \cdot \Delta t$  ist aufgrund des Meßverfahrens wenig abhängig vom primären Ionenstrom (s. III.1.1) und mit einer gegenüber den anderen Fehlern vernachlässigbaren Unsicherheit behaftet.

Nimmt man eine gauß'sche Fehlerfortpflanzung an, so ergibt dies eine Unsicherheit von  $\pm 25\%$  für  $B_R$ .

Abbildung 49 zeigt das Ergebnis für 6 verschiedene Messungen. Die Unsicherheiten sind als Fehlerbalken eingetragen. Die berechneten Punkte

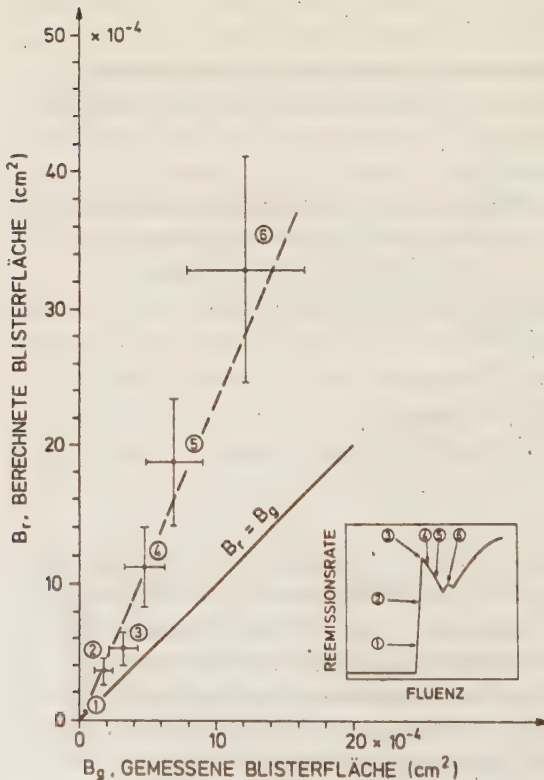


Abb. 49:

Vergleich der berechneten mit der gemessenen Blisterfläche für

40 keV  $^{25}\text{O}$   
 $^3\text{He} \rightarrow \text{Ni(E)}$

Die Skizze gibt das Stadium der Implantation der einzelnen Messungen wieder;

für die gestrichelte Gerade gilt:

$$B_R \approx 2,3 \cdot B_g$$

liegen in erster Näherung auf einer Geraden  $B_R = \alpha \cdot B_g$  ( $\alpha \approx 2,3$ ).

Das heißt, der Anteil der tatsächlich vorhandenen Blisterfläche ist zu klein, um allein die gesamte Reemission zu erklären. Es müssen also zusätzliche Flächen zur Reemission beitragen.

Die Voraussetzung für die hier vorgestellten Überlegungen war jedoch, daß Helium nur an den geblisterten Stellen entweicht. Dies bedeutet, das Helium muß aus der Umgebung eines Blisters zum Blister gelangen, oder es bestehen noch weitere Reemissionskanäle außerhalb der Blisterflächen.

Zwischengitterdiffusion aufgrund des Konzentrationsgradienten zur Oberfläche erscheint als möglicher Reemissionskanal nicht wahrscheinlich, da - wie oben erwähnt - auch noch nichtgesättigte Schichten durchlaufen werden müssen, in denen das Helium wieder aufgesammelt werden sollte. Helium könnte aber durch Risse, die von einer Tiefe im Bereich der häufigsten projizierten Reichweite  $R_p$  zur Oberfläche reichen, auch außerhalb der Blisterflächen frei werden. Allerdings muß dann diese mit Rissen durchzogene Schicht noch Helium bis zu einer Konzentration von 30 % auf sammeln können. Plausibler ist die Vorstellung, daß Helium nur an Blistern, wo die Oberfläche aufgerissen ist, reemittiert wird und Helium innerhalb einer Tiefenzone um  $R_p$  auch aus der Umgebung zu den Blistern gelangen kann.

Nimmt man an, daß das gesamte im Blister und in seiner Umgebung auf gesammelte Helium freigesetzt wird, so ist die Fläche dieser Umgebung nach Abb. 49 mehr als doppelt so groß wie die mittlere Blisterfläche selbst. Mit großer Wahrscheinlichkeit ist diese Umgebung jedoch sehr viel größer, da TEM-Untersuchungen an Blisterdeckeln gezeigt haben, daß die Gasblasenstruktur sich dort nicht wesentlich von der der übrigen beschossenen Probe unterscheidet (Mazey et al. 1977, St.-Jacques 1981), also das meiste Helium wahrscheinlich noch im Blisterdeckel enthalten bleibt und nicht emittiert wird.

Welcher Mechanismus könnte nun dafür sorgen, daß Helium lateral zu einem Blister gelangt?

Eine mögliche Erklärung können die TEM-Ergebnisse von Roth und Jäger (1980) sowie Johnson und Mazey (1980) an Nickel, und von Thomas und Wilson (1977) an Edelstahl geben, die feststellen, daß bei der kritischen Helium-

konzentration (die zuerst bei  $R_p$  erreicht wird) das Blasengitter im Metall aufgelöst wird und sich zwischen den Blasen kanalartige Verbindungen bilden. Sie beobachten dann eine netzwerkähnliche Struktur dieser Verbindungen.

Fenske (1979) findet bei TEM Untersuchungen an Nickel Blasenkoaleszenz im Bereich der häufigsten projizierten Reichweite  $R_p$ . Die Implantation mit 20 keV und 500 keV Heliumionen erfolgte dabei allerdings bei 500° C.

Blewer et al. (1972) beobachten an Erbium nach Heliumimplantation und Blisterbildung im Bereich der häufigsten projizierten Reichweite ein Blasen- und Kanalsystem. Dies wurde auch an Palladium von Bauer et al. (1972) sowie an Molybdän von Sone et al. (1978) gefunden. Man kann daher annehmen, daß sich bei der kritischen Fluenz unter der Oberfläche eine Zone bildet, in der Helium wandern kann, wenn es von seinem Aufsammlplatz verdrängt wird oder durch das Öffnen von Blasen freigesetzt wird. Werden dann Blister gebildet, so können durch plastische Verformung Risse, bzw. wenn der Blisterdeckel abreißt, größere Öffnungen in der Oberfläche entstehen, durch die Helium reemittiert werden kann.

Aus den Tiefenprofilen (Abb. 21) erkennt man, daß während der verstärkten Reemission die Heliumübersättigung in der Probe abgebaut wird. Dies kann der Grund dafür sein, daß die Reemissionsrate zunächst größer ist als nach dem Aufsammlmodell vorhergesagt wird, und sich diesem dann erst bei höheren Fluenzen anpaßt, nachdem die Übersättigung abgebaut ist.

Durch folgende Änderung im Aufsammlmodell (Abb. 50) könnte man den experimentellen Reemissionsratenverlauf im Bereich  $F/\bar{F}_{krit} \lesssim 2$  besser annähern:

Man läßt zunächst so viel Helium aufsammeln, bis eine kritische Konzentration von  $\rho_s = 0,4 \rho_{Ni}$  bei der häufigsten projizierten Reichweite erreicht ist.

Bei weiterem Heliumbeschuß läßt man jetzt die verstärkte Reemissionsrate auf den Wert steigen, den sie haben würde, wenn man die Berechnung mit  $\rho_s = 0,3 \rho_{Ni}$  durchgeführt hätte. Außerdem läßt man zu, daß die zusätzliche aufgesammelte Heliummenge (Abb. 50, etwa die schraffierte Fläche) ebenfalls reemittiert wird. In Abb. 50 ist dies beispielhaft eingezeichnet (dicke Linie).

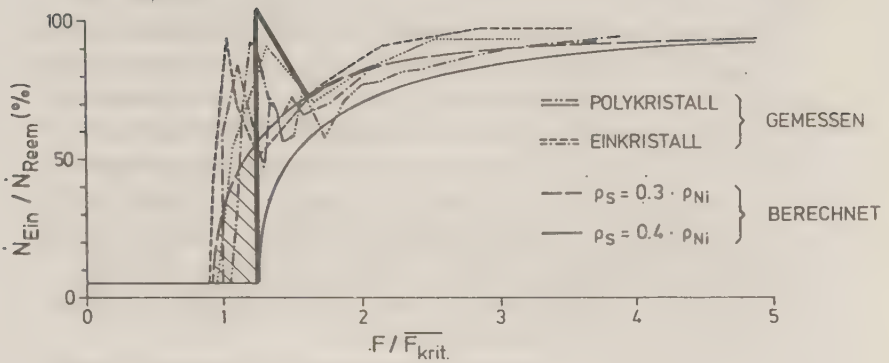


Abb. 50: Durch eine Erweiterung des Aufsammlmodells (dicke Linie) können die experimentellen Reemissionskurven besser angepaßt werden (s. Text)

Die Form des so erhaltenen Reemissionsratenspektrums hängt dann davon ab, in welchem Fluenzintervall nach der kritischen Fluenz die Kurve mit  $\rho_S = 0,3 \cdot \rho_{\text{Ni}}$  erreicht und mit welcher Rate die zusätzlich aufgesammelte Heliummenge reemittiert wird. Durch Wahl einer anderen, der Implantation besser angepaßten theoretischen Tiefenverteilung kann die experimentelle kritische Fluenz durch das Modell dann ebenfalls besser angenähert werden.

Den Abbau einer Übersättigungskonzentration im Bereich der häufigsten projizierten Reichweite der Heliumionen beobachtet auch Terreault et al. (1980). Bei 20 keV Heliumbeschuß auf Kupfer findet er eine maximale Heliumkonzentration von ca. 30 % kurz vor dem Blistern. Beschießt er über die kritische Fluenz hinaus, dann findet er bei  $R_p$  eine Konzentration von 5 %. Das Tiefenprofil besitzt dann bei  $R_p$  ein Minimum (Doppelmaximastruktur). Es zeigt sich bei Kupfer demnach eine ausgeprägtere Reduzierung der Übersättigung.

Die Frage, warum sich zunächst eine Übersättigungskonzentration aufbaut, ist bisher noch nicht genauer untersucht worden. Möglicherweise ist sie zur Überwindung der kritischen Bruchspannung im Material bei der Rißentstehung notwendig.

### Andere Reemissionsmechanismen

Neben dem oben dargestellten Reemissionsweg können noch weitere Mechanismen dazu beitragen, Helium freizusetzen. Durch plastische Verformung des beschossenen Materials beispielsweise kann die Wanderung von Versetzungen zur Oberfläche stattfinden und dadurch Gas dorthin transportiert und emittiert werden (Reed-Hill 1973). Dieser Prozeß kann bei der Aufwölbung des Blisters zur Reemission beitragen. Zwar wird auch während des gesamten Beschusses das Material durch Schwellen senkrecht zur Oberfläche plastisch verformt, jedoch ist dies ein kontinuierlicher Vorgang, ohne daß dabei eine kontinuierlich erhöhte Heliumreemissionsrate beobachtet wird.

Eine weitere Möglichkeit bildet die thermische Freisetzung von Helium aus Blisterdeckeln, die aufgrund mangelnder Wärmeleitfähigkeit durch den Ionenstrahl erwärmt werden.

Aus den Beobachtungen der Oberflächenveränderung bei Temperaturerhöhung nach dem Beschuß kann man einen oberen Temperaturgrenzbereich von ca.  $500^{\circ}\text{C}$  -  $600^{\circ}\text{C}$  angeben, da die Blisterform sich während des Beschusses bei Zimmertemperatur nicht thermisch verändert. Wahrscheinlich ist die Blisterdeckeltemperatur während des Beschusses von der übrigen Proben­temperatur jedoch nicht sehr verschieden ( $< 300^{\circ}$ ), da die TEM-Untersuchungen an Blisterdeckeln sonst sichtbare Größenunterschiede der Gasblasen im Blisterdeckel im Vergleich zum sonstigen Probenmaterial feststellen müßten. Dies wurde jedoch bisher nicht beobachtet (Mazey 1977, St.-Jacques 1981).

Zusammenfassend kann man folgendes Bild von der Heliumreemission bei Beschuß auf Ni aus den oben diskutierten Beobachtungen erhalten:

- a) Bis zum Erreichen der kritischen Fluenz wird Helium nur reflektiert.
- b) Es wird bei der Implantation eine Heliumübersättigung im Bereich der häufigsten projizierten Reichweite  $R_p$  aufgebaut. Dies verursacht dort die Bildung einer heliumdurchlässigen Zone. Wenn Blister gebildet werden, entstehen Öffnungen in der Oberfläche, durch die Helium freigesetzt werden kann, welches auch aus der Umgebung des Blisters ( $> 2$ fache mittlere Blisterfläche) stammt.

- c) Die Reemission setzt sich bei Fluenzen im Bereich des ersten Re-emissionsratenmaximums zusammen aus dem Anteil aufgrund des Abbaus der Übersättigungskonzentration und aus dem Anteil aufgrund von Sättigungseffekten.
- d) Mit zunehmender Fluenz bestimmen die Sättigungseffekte allein die gemessene Reemissionsrate.
- e) Wenn die Sättigungskonzentration von  $\rho_{\text{He}} = 0,3 \rho_{\text{Ni}}$  die Oberfläche erreicht, kann die gesamte beschossene Schicht von einem kanalartigen Netzwerk durchzogen sein und auch an nicht geblisterten Oberflächen Helium entweichen (Roth et al. 1980)

### V.1.3 Blistermodelle

Der Übergang von einem Blasengitter zu einer netzwerkartigen Struktur von Blasenverbindungen kann mit der Vorstellung des Interbubble fracture-Modells von Evans (siehe II.4+5) beschrieben werden. Allerdings ist es nicht möglich, quantitative Werte für den dazu notwendigen Blasendruck anzugeben, da dieser explizit von der kritischen Bruchspannung abhängt. Diese ist für dünne Filme beispielsweise erheblich größer als für kompaktes Material. Zusätzlich ist nicht bekannt, wie die Bestrahlung die kritische Bruchspannung des Materials verändert.

Die Evan'sche Vorstellung über die Blisterbildung (II.4) besagt nun, daß sich unterhalb eines späteren Blisters durch einen Reißvorgang ein Gasvolumen bildet, dessen Gasdruck die darüber liegende Schicht dann aufwölbt. Da nun die vorhergehende Diskussion gezeigt hat, daß auch aus der Umgebung eines Blisters Helium zum Blister gelangen kann, also freie Wege für das Gas existieren müssen, sollte man erwarten, daß um einen Blister herum eine Zone existiert, in der keine weiteren Blister gebildet werden können. Denn bevor sich dort heliumgefüllte Volumina ausbilden, die einen Druck besitzen, der zur Blisterbildung ausreicht, wird das Helium über die freien Wege an zuvor entstandenen Blistern freigesetzt. Diese blisterfreie Zone ist jedoch nicht zu beobachten, was in Abb. 18 besonders bei hohen Fluenzen ( $7,4 \times 10^{18}$  und  $1,6 \times 10^{19} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) zu erkennen ist. Zahlreiche Blister berühren sich oder bilden Gruppen, in denen sie sich gegenseitig berühren.

In Abb. 16 erkennt man, daß die Heliumreemissionsrate dann sinkt, wenn die Blisterbildungsrate verkleinert wird (Verringerung der Steigung der Streulichtintensität). Die Frage, warum die Blisterbildungsrate bei Fluenzen, bei denen Sättigungseffekte noch keine wesentliche Rolle spielen, kleiner wird, läßt sich mit dem Gasdruckmodell ebenfalls nicht beantworten.

Eine qualitative Antwort kann man auf der Grundlage des lateralen Spannungsmodells geben:

Wie EerNisse und Picraux (1977) gezeigt haben, steigt die integrale laterale Spannung mit der Fluenz, bis Blisterbildung einsetzt. Dabei wird die Spannung dann reduziert. Es zeigt sich, daß der zunächst lineare Zusammenhang zwischen integraler lateraler Spannung und Fluenz bei  $F \gtrsim 10^{15} \text{ He/cm}^2$  unterlinear wird. Unabhängig davon, welche Ursachen diesen Übergang bewirken (möglicherweise plastische Verformung, da die elastischen Kräfte im Kristallgitter die durch das Schwellen erzeugten Spannungen nicht kompensieren können), so verursacht nach diesen Experimenten zusätzliches Aufsammeln von Helium weiterhin monotonen Anstieg der integralen lateralen Spannung bis zur Blisterbildung.

Mit Hilfe dieser Beobachtung und der Voraussetzung, daß Orte, die einmal Helium reemittiert haben, nicht als neue Aufsammelzentren dienen können (entsprechend dem Aufsammelmodell), wird nun folgendes qualitatives Blisterbildungsmodell vorgeschlagen. Dieses betrachtet nicht nur die einzelne Blisterentstehung, sondern auch erstmals den Verlauf der Blisterbildungsrate während des Beschusses. Der Ausgangspunkt ist dabei die experimentelle Erfahrung. Diese wird zunächst kurz dargestellt und daran anschließend die Interpretation davon angegeben.

(i)  $F < F_{\text{krit}}$

Experimentelle Erfahrung:

Aufbau von integralen lateralen Spannungen (EerNisse und Picraux 1977). Bildung von Gasblasen in der Probe, die sich zu einem Blasen-gitter anordnen (Sass et al., 1973, Roth et al. 1980, Johnson et al. 1980).

Interpretation:

Durch den Beschuß entstehen Zwischengitteratome und Zwischengitteratomkomplexe. Diese bewirken zusammen mit implantiertem Helium und

Heliumüberdruckblasen Gitterverzerrungen und damit Spannungen im Material. Senkrecht zur Oberfläche können diese durch plastische Verformung (Schwellen) abgebaut werden. Parallel dazu ist dies nicht möglich (s. II.5). Diese lateralen Spannungen ändern sich mit der Tiefe im Material entsprechend der Änderung der Defekt- und Blasenstruktur und bilden aufsummiert die integrale laterale Spannung.

Über die Blasenentstehung existieren einige theoretische Untersuchungen (s. II.4). Experimentell ist jedoch darüber, ebenso wie über die Entstehung des Blasengitters, noch nichts bekannt.

(ii)  $F = F_{\text{krit}}$

#### Experimentelle Erfahrung:

Beim Erreichen der kritischen Fluenz bildet sich bei Zimmertemperaturbeschuß ein Netzwerk von Blasenverbindungen (Roth et al. 1980, Johnson et al. 1980). Bei höheren Temperaturen ( $500^{\circ}\text{C}$ ) lagern sich Heliumblasen zusammen (Fenske 1979), und es erfolgt im Bereich von  $R_p$  Rißbildung. Blisterbildung tritt gleichzeitig mit verstärkter Heliumreemission ein (diese Arbeit). Die Blister werden nicht alle gleichzeitig gebildet (diese Arbeit). Die integrale laterale Spannung wird durch Blisterbildung reduziert (EerNisse und Picraux).

#### Interpretation:

Die Ausbildung von Kanälen kann durch die von Evans (1977) beschriebene Rißbildung, verursacht durch den Gasüberdruck in den Blasen, ausgelöst werden. An Stellen, die eine infinitesimale Auslenkung der vom darunter liegenden kompakten Material nun schwächer gebundenen Schicht erfahren, kann die integrale laterale Spannung die Aufwölbung zum Blister verursachen, wie von Risch (1977) und EerNisse und Picraux (1977) dargestellt worden ist. Damit wird die Oberfläche geöffnet, und es kann aus dem Bereich der projizierten häufigsten Reichweite gleichzeitig mit der Blisterbildung verstärkt Helium reemittiert werden.

Es werden jedoch nicht alle Blister gleichzeitig gebildet. Die Blisterdichte wächst mit der Fluenz (Abb. 18). Man kann annehmen, daß die durch den Beschuß verursachten Veränderungen in der implantierten Schicht (Strahlenschäden, Blasen) über eine Fläche gemittelt, die

gleich der mittleren Blisterfläche ist, überall auf dem Beschußfleck gleich sind. Wenn nun die ersten Blister gebildet werden, müssen sich dann gleichzeitig an den nicht geblisternten Flächen die Voraussetzungen so ändern, daß dort nicht zum selben Zeitpunkt Blister entstehen können. Dies kann möglicherweise durch folgenden Vorgang erfolgen:

Man weiß, daß bei Blisterbildung die integrale laterale Spannung reduziert wird. Der Grund dafür kann die plastische Verformung der Oberfläche sein sowie auch der Verlust von Helium. Wenn nun bei der kritischen Fluenz in einer Tiefenzone um  $R_p$  eine heliumdurchlässige Schicht entsteht, dann kann der Heliumverlust an noch nicht geblisternten Stellen dort die lateralen Spannungen in dieser Tiefe reduzieren. Damit wird auch die integrale laterale Spannung, die nach EerNisse und Picraux (1977) für die Blisterbildung maßgebend ist, verkleinert. Dies kann besonders effektiv stattfinden, da im Bereich von  $R_p$  die höchste lokale Heliumkonzentration vorliegt.

(iii)  $F > F_{krit}$ :

#### Experimentelle Erfahrung:

Weiterer Beschuß führt zu folgender Korrelation zwischen Blisterbildungsrate und Reemissionsrate (diese Arbeit):

Man erhält zunächst eine fast konstante Blisterbildungsrate, die jedoch etwa bei der Fluenz, bei der man das Reemissionsratenmaximum beobachtet, kleiner wird. Weiterer Beschuß ändert die Blisterbildungsrate zunächst nicht. Erst bei der Fluenz, bei der die Reemissionsrate ein Minimum erreicht hat, steigt sie wieder. Ist die Probe mit Helium gesättigt, findet keine weitere Blisterbildung mehr statt (diese Arbeit).

#### Interpretation:

Die Heliumreemission kann man sich im wesentlichen in zwei Anteile zerlegt vorstellen:

Einmal in den Teil, der aufgrund von Sättigungseffekten frei wird, und zum anderen in den Teil, der die lokale Übersättigungskonzentration bei  $R_p$  abbaut. Dies führt zu einer zunächst höheren Re-

emissionsrate, als nach dem oben beschriebenen Aufsammlmodell erwartet wird. Damit werden jedoch durch diesen zusätzlichen Heliumverlust die lateralen Spannungen in der Tiefenzone um  $R_p$  reduziert und somit wird die Blisterbildungsrate verringert.

Zusätzliches Helium kann nur noch dort aufgesammelt werden, wo die Sättigungskonzentration noch nicht erreicht ist (Abb. 21). Das Aufsammlen findet jedoch dort mit einer geringeren Wahrscheinlichkeit statt als bei  $R_p$ . Aufgrund der geringeren Heliumkonzentration ist auch die Blasenentwicklung in diesem Tiefenbereich weniger weit fortgeschritten als bei  $R_p$  selbst (Roth et al. 1980). Das heißt, man kann annehmen, daß durch weitere Heliumanlagerung dort lokal die lateralen Spannungen noch wachsen. Für die weitere Blisterbildung ist aufgrund der Rißbildung nur der der Oberfläche zugewandte Anteil der noch nicht gesättigten Schichten maßgebend.

Aufgrund der geringeren Wahrscheinlichkeit der Heliumanlagerung bei weiterem Beschuß ändert sich die reduzierte Blisterbildungsrate zunächst nicht. Erst wenn die integralen lateralen Spannungsverluste aufgrund der zusätzlichen Heliumreemission aus dem Bereich um  $R_p$  ausgeglichen sind, kann die Blisterbildungsrate wieder ansteigen.

Die Reemissionsrate ist dann - nach Abbau der Übersättigungskonzentration - entsprechend dem Aufsammlmodell im wesentlichen durch Sättigungseffekte bestimmt.

Blister werden solange zusätzlich gebildet, bis kein Helium mehr aufgesammelt wird, also Sättigung erreicht ist.

Nach diesem Modell ist die Heliumreemission während der Implantation also nur mittelbar von der Blisterbildung abhängig. Die Blister öffnen nur die Wege zur Oberfläche, verursachen allein jedoch nicht, daß Helium reemittiert wird.

#### VI.1.4 Folgerungen aus der Modellvorstellung

##### a) Beschuß auf Polykristall

Die Reemissionsspektren beim Beschuß von Polykristallen zeigen auch nach dem ersten Maximum eine ausgeprägte Struktur, sowie - entsprechend dazu - Änderungen in der Streulichintensitätsrate. Man erkennt auf geblisterten, polykristallinen Proben auf verschiedenen Körnern unterschiedliche Blisterdurchmesser und Blisterdichten. Dies kann auf die unterschiedlichen Kristallorientierungen der Körner zurückgeführt werden (Verbeek et al. 1974, Roth 1974). Dadurch wird die kritische Fluenz bei Körnern, die Gitterführung des eingedrungenen Ionenstrahles ermöglichen, nach oben verschoben. Daher kann die Blisterentwicklung auf verschiedenen Körnern zeitlich versetzt ablaufen, was zur Mehrfachmaximastruktur führen kann.

Auch die Abhängigkeit mechanischer Eigenschaften von der Kristallorientierung kann dies bewirken.

##### b) Beschuß mit verschiedenen Energien

Aus dem beschriebenen Blisterbildungsmodell kann gefolgert werden, daß bei niederen Beschußenergien ( $< 40$  keV) die Probe nach der kritischen Fluenz schneller mit zusätzlichen Blistern bedeckt wird als beim Beschuß mit 40 keV. Der Grund dafür liegt dann in der Form des Tiefenprofils (Abb. 51):

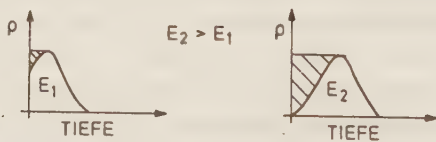


Abb. 51: s. Text (E = He-Energie)

Die schraffierte Fläche ist bei kleiner Energie kleiner und damit bei gleicher Ionenstromdichte auch schneller mit Heliumatomen besetzt. Blistermessungen von Roth (1974) (4 keV He  $\rightarrow$  Ni) zeigten, daß sich die Blisterzahl nach der kritischen Fluenz sichtbar nicht weiter vergrößert. Dagegen wächst die Blisterzahl bei den in dieser Arbeit geschilderten 40 keV-Messungen von der kritischen Fluenz an bis etwa zu einer Fluenz

von  $2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  (Abb. 17). Bei der Implantation von 150 keV Heliumionen in Nickel ändert sich die Oberflächenstruktur ebenfalls noch nach der kritischen Fluenz (Abb. 23). Allerdings erhält man hier auch das Abschälen von größeren Flächen (Flaking). Zusätzlich zeigt das Reemissionsratenspektrum kein Maximum bei der kritischen Fluenz.

Eine Erklärung dafür kann noch nicht gegeben werden. Nach Risch (1978) ist für Flaking der Gasdruck und nicht die integrale laterale Spannung in der implantierten Probe entscheidend.

Es bedarf jedoch zusätzlicher Messungen der Tiefenprofile und Oberflächenstrukturentwicklung mit der Fluenz, um weitergehende Aussagen zu treffen.

### c) Beschuß bei höheren Temperaturen

Im folgenden werden nur die Implantationen diskutiert, bei denen man Blisterbildung erhält ( $T_B < 720^\circ \text{C}$ ). Die Messungen bei noch höheren Beschußtemperaturen werden im nächsten Abschnitt des Diskussionsteiles besprochen.

Durch den Beschuß bei den in Abb. 25 und 26 angegebenen Temperaturen erhält man ein ausgeprägteres Reemissionsratenmaximum als bei Zimmertemperaturbeschuß. Dies läßt vermuten, daß die Rißbildung in der beschossenen Schicht bei der kritischen Fluenz so erfolgt, daß sich größere Flächen an der Oberfläche öffnen können. Damit wird ein größerer Heliumstrom aus der beschossenen Probe heraus ermöglicht.

Die größeren Blister in der Abb. 27 können diese Vermutung bestätigen.

Bei höheren Beschußtemperaturen ( $580^\circ \text{C}$ ,  $640^\circ \text{C}$ ) sinkt die kritische Fluenz. Aus TEM-Untersuchungen an Nickel nach Heliumimplantation bei Zimmertemperatur und bei  $500^\circ \text{C}$  weiß man (Fenske 1979), daß man bei höheren Beschußtemperaturen auch größere Blasen erhält. Die Blasenkoaleszenz und damit die Rißbildung zur Schaffung einer heliumdurchlässigen Schicht bei  $R_p$  ist somit bei kleineren Fluenzen erreichbar (s.a. VI.2.2.a). Zusätzlich ändern sich in Metallen mit der Temperatur die mechanischen Eigenschaften. Der Einfluß des Heliums darauf ist jedoch nicht genau bekannt. Nach Evans (1977) sinkt die theoretische Bruchspannung mit steigender Temperatur, was ebenfalls zu kleineren kritischen Fluenzen führen kann.

Ebenfalls einen Einfluß auf die Blisterbildung bei höheren Beschußtemperaturen hat wahrscheinlich das Ausheilen von Defektstrukturen. Nach Wycisk et al. (1978) können Leerstellen in Nickel bereits ab  $200^{\circ}\text{C}$  wandern, wodurch erhöhte Rekombination möglich wird. Für weitergehende Aussagen im Zusammenhang mit Blisterbildung bedarf es jedoch zusätzlicher Untersuchungen.

Da bei allen Beschußtemperaturen die verstärkte Reemissionsrate und die Blisterbildung gleichzeitig einsetzen, kann dies als Hinweis dafür gewertet werden, daß verstärkte Heliumreemission auch hier erst durch die mechanische Öffnung der Oberfläche ermöglicht wird.

Die Tiefenprofile (Abb. 28) zeigen bei höheren Beschußtemperaturen geringere maximale Heliumkonzentrationen, jedoch keine Verbreiterung gegenüber Zimmertemperaturbeschuß. Damit scheint Heliumdiffusion auch hier nicht wesentlich zur Reemission beizutragen.

## VI.2 Thermische Desorption und thermische Oberflächenveränderung

Im folgenden wird versucht, die gemessenen thermischen Desorptionsmaxima von Helium aus Nickel möglichen Freisetzungsmechanismen zuzuordnen.

Im Vergleich zu den meisten bisher veröffentlichten Desorptionsmessungen und -analysen, die bei niedrigen Energien ( $\lesssim 1\text{ keV}$ ) und niedrigen Fluenzen ( $\lesssim 10^{15}\text{ He}^{+}/\text{cm}^2$ ) ausgeführt wurden, ist die Interpretation der vorliegenden Spektren aus folgenden Gründen zusätzlich erschwert:

- (i) Die Implantation erfolgte wegen der hohen Energien in großen Tiefen ( $E_{\text{He}} \gtrsim 40\text{ keV}$ ,  $R_p \gtrsim 150\text{ nm}$ ). Da dabei Gitterschädigung verursacht wird, besteht für den Wiedereinfang von aus einem Aufsammlerplatz thermisch freigesetztem Helium eine größere Wahrscheinlichkeit als für Helium, welches wenige Monolagen unter der Oberfläche freigesetzt wird (wie bei den Experimenten von Kornelsen 1972 und Kornelsen et al. 1974).

- (ii) Aufgrund der hohen geschossenen Fluenzen erhält man neben Punktdefekten (ein Heliumatom in einer Leerstelle) vor allem Defektkomplexe (mehrere Heliumatome in einer oder mehreren Leerstellen, Gasblasen). Damit kann sich der Freisetzungsprozeß aus einer Vielzahl von einzelnen Desorptionsstufen zusammensetzen, die im einzelnen nicht aufzulösen sind.

Die Form der Desorptionsspektren nach Zimmertemperaturbeschuß (Abb. 52) legt nahe, die Desorption in folgende zwei Temperaturbereiche aufzuteilen und die Interpretation danach vorzunehmen:

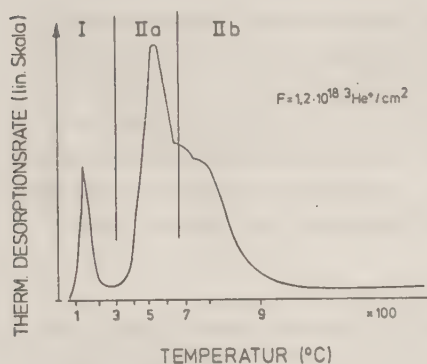


Abb. 52:

Einteilung des Temperaturbereiches für die thermische Desorption  
 $25^{\circ}\text{C}$   
 $40 \text{ keV } ^3\text{He} \rightarrow \text{Ni(P)}$

### Bereich I bis $300^{\circ}\text{C}$

Hier findet Desorption nur statt, wenn mit überkritischen Fluenzen geschossen wurde. Dabei entsteht ein deutliches Maximum zwischen  $100^{\circ}\text{C}$  und  $200^{\circ}\text{C}$ , das durch ein ausgeprägtes Minimum bei etwa  $300^{\circ}\text{C}$  vom übrigen Desorptionsspektrum getrennt ist. Während des Erwärmens auf  $300^{\circ}\text{C}$  findet keine sichtbare Oberflächenveränderung auf der Probe statt.

### Bereich II: a) $300^{\circ}\text{C} - 650^{\circ}\text{C}$ b) $> 650^{\circ}\text{C}$

zu a) Nach Beschuß mit überkritischen Fluenzen beginnt in diesem Temperaturbereich der Teil der Desorption, der den größten Anteil des implantierten Gases freisetzt. Die Spektren zeigen weniger

gut isolierte Maxima als im Bereich I. Die Probenoberfläche wird durch Löcherbildung und Entstehung von thermischen Blistern sowie Oberflächendiffusion von Nickel verändert.

zu b) In diesem Temperaturbereich ist der Temperatur-Zeit-Verlauf erheblich nichtlinear (geringere Temperaturgeschwindigkeit). Dies führt zu einer Verzerrung der Spektren gegenüber dem linearen Temperaturbereich. Desorptionsmaxima werden dadurch zu niedrigeren Temperaturen verschoben.  
Es findet weiterhin Oberflächenveränderung statt.

Für einen Vergleich mit bisherigen thermischen Desorptionsmessungen von Helium aus Nickel wurden die Ergebnisse verschiedener Autoren in Tabelle 4 zusammengestellt und nach dem oben beschriebenen Schema gegliedert. Soweit in den Arbeiten angegeben, ist der vermutete Freisetzungsprozeß und die Aktivierungsenergie dafür aufgelistet. Ebenfalls wurde - soweit vorhanden - der für die Berechnung der Aktivierungsenergie angenommene oder aus Messungen bestimmte Frequenzfaktor und die Desorptionsordnung angegeben.

Im Fluenzbereich für Blisterbildung wurden bisher die wenigsten Arbeiten durchgeführt. Die Messungen von Pontau et al. (1981) und von Bauer und Wilson (1971) zeigen prinzipiell ähnliche Desorptionsspektren wie die, die in der vorliegenden Arbeit nach Beschuß bei Zimmertemperatur mit überkritischer Fluenz gefunden wurden. Sie finden ebenfalls ein Desorptionsmaximum bei kleinen Temperaturen ( $< 300^{\circ}\text{C}$ ), das vom restlichen Spektrum deutlich getrennt ist. Bei der Messung von Pontau et al. (1981) ( $4\text{ keV He} \rightarrow \text{Ni}$  bei Raumtemperatur) liegt diese Maximumtemperatur bei  $150^{\circ}\text{C}$ .

#### VI.2.1 Temperaturbereich I: bis $300^{\circ}\text{C}$

Ein zusätzliches Desorptionsmaximum nach monoenergetischem Heliumbeschuß mit überkritischer Fluenz finden auch Pisarev et al. (1975) bei Niob ( $E_{\text{He}} = 15\text{ keV}$ ) und Erents et al. (1973) bei Molybdän ( $E_{\text{He}} = 36\text{ keV}$ ). Als Ursache vermuten letztere, daß Helium durch Aufreißen geschlossener Blisterdeckel während der Temperaturerhöhung frei wird. Dies kann für

Tabelle 4

| Probe                                          | He-Energie (eV)      | Flugzeit (He/cm <sup>2</sup> )       | Temp. (°C) | Maxima (°C) | F | Aktivierungsenergie E (eV) | vermuteter Prozess | Referenz                                                                                                                                  |                             |
|------------------------------------------------|----------------------|--------------------------------------|------------|-------------|---|----------------------------|--------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------|
| I: 20 <sup>0</sup> C - 300 <sup>0</sup> C      |                      |                                      |            |             |   |                            |                    | < 0,3 Tm (K)                                                                                                                              |                             |
| E<100>                                         | 200                  | 2·10 <sup>12</sup>                   | 20         | 240         |   |                            |                    | (x) Kornelsen et al. (1974)                                                                                                               |                             |
| E<111>                                         | 30                   | 10 <sup>15</sup>                     | 20         | 240         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 1,5                | Oberflächendiffusion von Nickel (~ 1,5 eV)                                                                                                | Donnelly (1978)             |
| P                                              | Tritium beladen      | Komp. 2,8·10 <sup>-3</sup> ppm       | 20         | 100         |   |                            | 0,4-0,5            | Helium 2G-Diffusion                                                                                                                       | Cost/Hickmann (1974)        |
| P                                              | 100-600              | 2·10 <sup>13</sup> -10 <sup>16</sup> | 20         | 127         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 1,09               |                                                                                                                                           | (xx)                        |
| "                                              | "                    | "                                    | "          | 165         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 1,20               |                                                                                                                                           |                             |
| "                                              | "                    | "                                    | "          | 261         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 1,47               |                                                                                                                                           | Rantanen et al. (1969)      |
| E<100>                                         | 100-2400             | 10 <sup>12</sup> -10 <sup>15</sup>   | 20         | 109         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 1,04               |                                                                                                                                           |                             |
| "                                              | "                    | "                                    | 20         | 211         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 1,33               |                                                                                                                                           |                             |
| P                                              | 300-10 <sup>13</sup> | 7,5·10 <sup>17</sup>                 | -180       | 100         |   | 10 <sup>13</sup>           | 0,75               |                                                                                                                                           | Bauer/Wilson (1971)         |
| P                                              | 300-10 <sup>13</sup> | 1·10 <sup>18</sup>                   | -180       | 100         |   | 10 <sup>13</sup>           | 0,75               |                                                                                                                                           |                             |
| E                                              | 160                  | 2·10 <sup>15</sup>                   | 25         | 210         | 1 |                            | 1,3                | Ausheilen von Strahlenschäden                                                                                                             | Reed et al. (1974)          |
| P                                              | 4·10 <sup>3</sup>    | 2,8·10 <sup>17</sup>                 | 20         | 150         |   |                            |                    | RiBb-Bildung, Kanalbildung                                                                                                                | Pontau et al. (1981)        |
| II a): 300 <sup>0</sup> C - 650 <sup>0</sup> C |                      |                                      |            |             |   |                            |                    | 0,3 Tm - 0,5 Tm (K)                                                                                                                       |                             |
| E<100>                                         | 200                  | 2·10 <sup>12</sup>                   | 20         | 430         | 1 | 10 <sup>12-13</sup>        | 1,70               | He <sub>2</sub> V + HeV + He                                                                                                              | (x) Kornelsen et al. (1974) |
|                                                | 200                  | "                                    | 20         | 580         | 1 | "                          | 2,10               | He <sub>2</sub> V + V + He                                                                                                                |                             |
| P                                              | 50                   | 5·10 <sup>15</sup>                   | 20         | 480         |   |                            |                    |                                                                                                                                           |                             |
| P                                              | 100                  | "                                    | 20         | 480         |   |                            |                    |                                                                                                                                           |                             |
| Ecr>                                           | 200                  | "                                    | 20         | 585         | 1 |                            | 2,3                | Ausheilen von Strahlenschäden                                                                                                             | Reed et al. (1974)          |
| Ecr>                                           | 400                  | "                                    | 20         | 585         | 1 |                            | 2,3                |                                                                                                                                           |                             |
| E<111>                                         | 30                   | 10 <sup>15</sup>                     | 20         | 430         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 1,8                | Helium aus oberflächen-nahen Einzel-Leerstellen und/oder aus Leerstellen, deren Aktivierungsenergie durch Verunreinigungen verringert ist | Donnelly (1978)             |
| "                                              | 200                  | 10 <sup>15</sup>                     | 20         | 470         |   |                            |                    | Helium aus Einzel-Leerstellen ohne Einfluß der Oberfläche                                                                                 |                             |
| "                                              | 30                   | 10 <sup>15</sup>                     | 20         | 580         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 2, 2,3             |                                                                                                                                           | (xx)                        |
| "                                              | 200                  | 10 <sup>15</sup>                     | 20         | 580         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 2, 2,3             |                                                                                                                                           |                             |
| E<100>                                         | 100-2400             | 10 <sup>12</sup> -10 <sup>15</sup>   | 20         | 394         | 1 | 10 <sup>12</sup>           | 1,65               |                                                                                                                                           |                             |
| P                                              | 100-600              | 2·10 <sup>13</sup> -10 <sup>16</sup> | 20         | 346         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 1,71               | Oberflächendiffusion v.Ni                                                                                                                 | Rantanen et al. (1969)      |
| P                                              | 4·10 <sup>3</sup>    | 1,4·10 <sup>17</sup>                 | 25         | 540         | 1 | 10 <sup>13</sup>           | 2,18               |                                                                                                                                           |                             |
| P                                              | 4·10 <sup>3</sup>    | 2,8·10 <sup>17</sup>                 | 25         | 550         |   |                            |                    |                                                                                                                                           | Pontau et al. (1981)        |
| II b): ≥ 650 <sup>0</sup> C                    |                      |                                      |            |             |   |                            |                    | ≥ 0,5 Tm (K)                                                                                                                              |                             |
| E<100>                                         | 200                  | 2·10 <sup>12</sup>                   | 20         | 700         | 1 | 10 <sup>12-13</sup>        | 2,35               | He <sub>2</sub> V <sup>2</sup> (He) + V <sup>2</sup> (He) + He                                                                            | (x)                         |
| "                                              | 200                  | "                                    | 20         | 830         | 1 | "                          | 2,70               | He <sub>2</sub> V <sub>2</sub> + HeV <sub>2</sub> + He                                                                                    | Kornelsen et al. (1974)     |
| "                                              | 200                  | "                                    | 20         | 980         |   |                            |                    | He <sub>2</sub> V <sub>2</sub> + He <sub>2</sub> V + He                                                                                   |                             |
| P                                              | 50                   | 5·10 <sup>15</sup>                   | 20         | 900         | 1 |                            | 3,1                |                                                                                                                                           |                             |
| P                                              | 100                  | "                                    | 20         | 960         |   |                            |                    |                                                                                                                                           |                             |
| P                                              | 400                  | "                                    | 20         | 1060        |   |                            |                    | Gasatome-Defekt-Agglomerate (Wanderung, Dissotiation)                                                                                     | Reed et al. (1974)          |
| P                                              | 600                  | "                                    | 20         | 1150        |   |                            |                    |                                                                                                                                           |                             |
| P                                              | 1000                 | "                                    | 20         | 1200        |   |                            |                    |                                                                                                                                           |                             |
| Ecr>                                           | 200                  | "                                    | 20         | 935         | 1 |                            | 2,7                | Zusammenhang mit H <sub>2</sub> Selbstdiffusion                                                                                           |                             |
| "                                              | 400                  | "                                    | 20         | 1020        | 1 |                            | 3,3                |                                                                                                                                           |                             |
| "                                              | 400                  | "                                    | 20         | 1110        | 1 |                            | 3,6                | Gasatome-Defekt-Agglomerate (Wanderung, Dissotiation)                                                                                     |                             |
| "                                              | 600                  | "                                    | 20         | 1230        |   |                            |                    |                                                                                                                                           |                             |
| "                                              | 1000                 | "                                    | 20         | 1265        | 1 |                            | 4,1                |                                                                                                                                           |                             |
| E<111>                                         | 200                  | 10 <sup>15</sup>                     | 20         | 960         |   |                            | 2, 2,6             | Gaskomplexe-Wanderung-Dissotiation, Selbstdiffusion v.Ni                                                                                  | Donnelly (1978)             |

Tabelle 4

| Probe  | Ne-Energie (eV)   | Fluenz, $(\text{Ne}^+, \text{cm}^{-2})$       | Temp. (°C) | Mastma (°C) | Aktivierungsenergie |           | Vermuteter Prozeß | Referenz                                                                  |
|--------|-------------------|-----------------------------------------------|------------|-------------|---------------------|-----------|-------------------|---------------------------------------------------------------------------|
|        |                   |                                               |            |             | r<br>(1/s)          | E<br>(eV) |                   |                                                                           |
| P      | Tritium<br>selbst | Konz. $\approx 8,1 \cdot 10^{15} \text{ ppm}$ | 20         | 900         |                     |           |                   | Cost, Mickmann (1974)                                                     |
| E<100e | 100-2400          | $10^{12} - 10^{15}$                           | 20         | 863         | 1                   | $10^{13}$ | 3,1               | Selbstdiffusion v. H und<br>Blasenwanderung<br><br>Rantanen et al. (1969) |
| E<100e | 100-2400          | "                                             | 20         | 980         | 1                   | $10^{13}$ | 3,42              |                                                                           |
| P      | 100-600           | $2 \cdot 10^{13} - 10^{16}$                   | 20         | 812         | 1                   | $10^{13}$ | 3,0               |                                                                           |
| P      | 100-600           | "                                             | 20         | 931-1007    | 1                   | $10^{13}$ | 3,4               |                                                                           |
| P      | $300 \cdot 10^3$  | $1 \cdot 10^{18}$                             | -180       | 700         |                     |           |                   | Bauer/Wilson (1971)                                                       |
| P      | $4 \cdot 10^3$    | $1,4 \cdot 10^{17}$                           | 25         | 650         |                     |           |                   | Pontau et al. (1981)                                                      |

a) Vorschädigung der Probe durch  $1 \cdot 10^{11} \text{ Ne}^+/\text{cm}^2$  (5 keV), E, r, wurden über Messungen ermittelt

b) Die Temperaturen werden von Rantanen als Mittelwerte verschiedener Messungen mit verschiedener Energie und Fluenz angegeben.

das hier beobachtete Desorptionsmaximum bei  $150^{\circ}\text{C}$  nicht der Fall sein, da bei hohen Fluenzen ( $\sim 10^{19}\text{ He}^{+}/\text{cm}^2$ ) die Blisterdeckel durch Zerstäubung geöffnet sind (Abb. 18) und das Desorptionsmaximum dennoch nicht verschwindet (Abb. 29). Bei oberflächennaher Implantation, die keine Blisterbildung ergibt, zeigt sich das Desorptionsmaximum ebenfalls deutlich (Abb. 43). Die Untersuchungen mit Hilfe des TEM (Abb. 36, 37) ergeben, daß nach 40 keV Beschuß bei der Erwärmung im Temperaturbereich I Blasenkoaleszenz stattfindet.

Ein möglicher Desorptionsmechanismus läßt sich daraus jedoch nicht ableiten, da die Desorption der energieverteilt implantierten Probe bis  $300^{\circ}\text{C}$  nicht von Blasenkoaleszenz begleitet wird (Roth et al. 1980). Es zeigt sich stattdessen eine unveränderte Blasen- und Defektstruktur.

Aus der Veränderung des Tiefenprofils (Abb. 35) nach Erwärmung der Probe auf  $250^{\circ}\text{C}$  erkennt man, daß Helium auch aus dem Volumen des Kristalls freigesetzt wird. Einerseits kann daraus vermutet werden, daß ein diffusionsbestimmter Prozeß Helium an die Oberfläche bringt, andererseits existiert aufgrund der Implantation und der Blisterbildung im Bereich der mittleren projizierten Reichweite der Heliumionen eine heliumdurchlässige Zone sowie Öffnungen an der Oberfläche. Damit kann die Freisetzung auch durch Ein-Sprung-Prozesse bestimmt sein. Nimmt man jedoch diffusionsbestimmte Prozesse an, so kann man zusätzlich erwarten, daß aufgrund der hohen Gitterschädigungen Wiedereinfang von diffundierendem Helium wahrscheinlich ist.

Ob reine Diffusion von Helium bzw. Diffusion mit Wiedereinfang an nicht sättigenden Aufsammelplätzen das Desorptionsmaximum bei  $150^{\circ}\text{C}$  beschreibt, kann mit Hilfe der Gleichungen (37) und (38) im Abschnitt III.3 abgeschätzt werden.

Dazu wird die Verschiebung der Desorptionsmaximumstemperatur relativ zur Messung nach der Implantation mit 40 keV berechnet, die sich ergibt, wenn man die Tiefe der Heliumanfangsverteilung verändert. Dies wird experimentell durch den Beschuß mit verschiedenen Energien (90 keV, 150 keV) durchgeführt.

Zur Berechnung wird ein Frequenzfaktor von  $10^{13}\text{ 1/s}$  und eine mittlere Tiefe  $P$  von 600 Atomabständen für den 40 keV Beschuß sowie

eine Diffusionssprungweite von einer Gitterkonstanten ( $L = 1$ ) angenommen. Mit  $\beta = 7\%$  erhält man zunächst die Aktivierungsenergie für Diffusion aus Gleichung (37)

$$E_D = 0,65 \text{ eV}$$

und die Aktivierungsenergie für Diffusion mit Wiedereinfang aus (38)

$$E_{DT} = 0,86 \text{ eV.}$$

Diese gilt streng nur für eine ebene Heliumanfangsverteilung in der Tiefe  $x = p_0 \cdot \lambda$ . Eine breitere Verteilung, etwa der Form  $x e^{-x}$ , ergibt eine nur um etwa 3 % verschiedene Aktivierungsenergie, wenn  $p_0 \cdot \lambda$  als die mittlere Tiefe der Verteilung angenommen wird (Kelly & Matzke 1966).

Aus den Beziehungen (37) und (38) erhält man nun für die Maximumtemperaturen  $T_m^D$  bzw.  $T_m^{DT}$  mit  $x' = p \cdot \lambda$ , und der Vernachlässigung

$$\ln T_m^{D,DT} = \ln T_m^{D,DT} :$$

$$\frac{T_m^D}{T_m^D} = 1 - \frac{k T_m^D}{E_D} 2 \ln \frac{p'}{p} \quad (T \text{ in K})$$

$$\frac{T_m^{DT}}{T_m^{DT}} = 1 - \frac{k T_m^{DT}}{E_{DT}} \ln \frac{p'}{p} \quad (\text{mit } p \gg 1)$$

Für die im Experiment benutzten Beschußenergien wurde  $T_m^D$  und  $T_m^{DT}$  berechnet. Dabei wurde  $p'$  aus den von Ziegler (1977) angegebenen projizierten Reichweiten ermittelt. Tabelle 5 zeigt das Ergebnis. Bei den Berechnungen wurden die gemessenen Temperaturen um  $8^\circ$  reduziert und das Ergebnis dann wieder um  $8^\circ$  erhöht. Damit wurde die Temperaturverschiebung durch die apparative Zeitkonstante berücksichtigt. Zum Vergleich sind die gemessenen Maximatemperaturen angegeben.

Tabelle 5:

| $E_{3\text{He}}$ (keV)                         | 40  | 90  | 150 |
|------------------------------------------------|-----|-----|-----|
| $p'/p$                                         | 1   | 2   | 3   |
| $T_m^{'D}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )              | 146 | 180 | 202 |
| $T_m^{'DT}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )             | 146 | 158 | 165 |
| $T_m^{D,DT}$ (gemessen) ( $^{\circ}\text{C}$ ) | 146 | 148 | 153 |

Nimmt man bei der Berechnung der Aktivierungsenergien für  $v$  statt  $10^{13}$  l/s etwa  $10^{15}$  l/s, so erhält man dann für  $p'/p = 3$ :

$$T_m^{'D} = 190^{\circ}\text{C}$$

$$T_m^{'DT} = 162^{\circ}\text{C}$$

Eine Verkleinerung von  $v$  ergibt größere Temperaturen. Die berechneten Temperaturverschiebungen für höhere Beschußenergien werden nicht beobachtet. Ein diffusionsbestimmter Prozeß mit oder ohne Wiedereinfang von Helium liegt danach nicht vor.

Nimmt man dennoch an, daß Helium vom Aufsammelplatz durch das bestrahlte Volumen zur Probenoberfläche interstitiell wandert, so kann aus diesem Ergebnis geschlossen werden, daß die Diffusion schnell sein muß im Vergleich zur Freisetzungsrates aus den Aufsammelplätzen.

Dies würde qualitativ übereinstimmen mit den Ergebnissen von Wilson und Johnson (1972), die eine sehr kleine Aktivierungsenergie (0,08 eV) für Zwischengitterwanderung von Helium in Nickel berechnen, sowie den experimentellen Ergebnissen von Kornelsen et al. (1974).

Zur Untersuchung ob Ein-Sprung-bestimmte Prozesse das gemessene Desorptionsmaximum beschreiben können, wurde die Desorptionskurve nach der Methode von van Gorkum (1981) - siehe III.3 - ausgewertet. Dazu wurde die Temperaturverschiebung des gemessenen Maximums aufgrund der

apparativen Zeitkonstante berücksichtigt (s. III.1.2) und der Untergrund durch die Desorption im Temperaturbereich bei  $300^{\circ}\text{C}$  abgezogen. Für die Auswertung wurde der Temperaturbereich von  $370^{\circ}\text{C}$  bis  $460^{\circ}\text{C}$  gewählt, in dem die Temperaturgeschwindigkeit nahezu konstant ist ( $\frac{\Delta\beta}{\beta} < 10\%$ ). (Eine Änderung von  $\beta$  bei  $\beta = 7^{\circ}/\text{s}$  um  $\pm 10\%$  ergibt eine Temperaturverschiebung von etwa  $\pm 2$  Grad.)

Abbildung 53 zeigt das Ergebnis der Auswertung. Die Anpassungsgeraden wurden nach der Methode der kleinsten Quadrate durch die Meßpunkte gelegt. Das Bestimmtheitsmaß  $m^2$  für die Güte der Anpassung soll dabei möglichst nahe an 1 liegen.

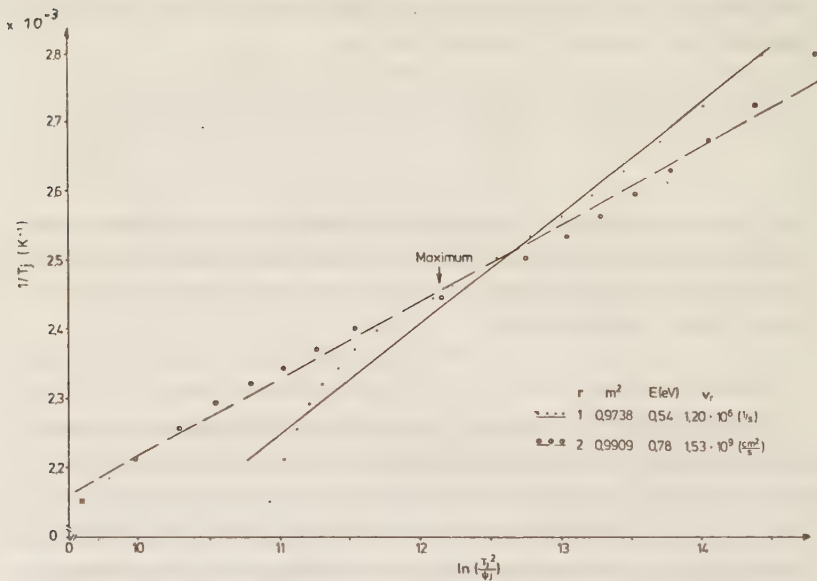


Abb. 53: Auswertung des Desorptionsmaximums nach der Methode von van Gorkum (1981)

Aus der Steigung und dem  $1/T_j$ -Achsenabschnitt der Geraden erhält man die Aktivierungsenergie  $E$  und die Reaktionsratenkonstante  $v_r$ . Für eine Reaktion erster Ordnung gilt danach:

$$E_1 = 0,54 \text{ eV} \quad v_1 = 1,20 \cdot 10^6 \text{ 1/s}$$

Für eine Reaktion zweiter Ordnung gilt:

$$E_2 = 0,78 \text{ eV} \quad v_2 = 1,53 \cdot 10^9 \text{ cm}^2/\text{s}.$$

Für eine Reaktion erster Ordnung ergibt sich ein sehr kleiner Frequenzfaktor, der mehrere Größenordnungen von den Werten abweicht, die andere Autoren (Kornelsen z.B. erhält  $v_1 = 10^{12 \pm 1}$ ) bei Desorptionsmessungen gefunden haben. Die Geradenanpassung wird vor allem im Bereich hoher Temperaturen (kleine  $1/T_j$ ) schlechter.

Die Anpassung an eine Reaktion zweiter Ordnung ist besser ( $m^2 = 0,9909$ ). Allerdings muß - wenn eine Reaktion zweiter Ordnung vorliegt - die Maximumtemperatur abhängig sein von der anfänglichen Helium-Besetzungsdichte  $n_0$  in den Aufsammelplätzen, zur Zeit  $t = 0$  bzw. Temperatur  $T = T_0$  ( $T = T_0 + \beta t$ ). Für die verschiedenen Fluenzen in Abb. 29 wurden die Maximatemperaturen mit Hilfe von Gleichung (35) analog zur oben angegebenen Berechnung bei Diffusion ermittelt. Dabei wurde der aus Abb. 53 erhaltene Wert für  $E_2$  verwendet.

Aus Gleichung (28) erhält man:

$$T_m/T_m' = 1 + \frac{kT_m}{E_2} \ln \frac{n_0'}{n_0} \quad (T \text{ in K})$$

mit  $n_0$  = Anfangsbesetzungsdichte für  $F = 1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$   
und  $n_0'$  = Anfangsbesetzungsdichte für eine andere Fluenz.  
Daraus folgt Tabelle 6.

Tabelle 6:

|                                                    |     |     |     |     |     |
|----------------------------------------------------|-----|-----|-----|-----|-----|
| $F \times 10^{17} \frac{\text{He}^+}{\text{cm}^2}$ | 5,2 | 6,4 | 12  | 40  | 140 |
| $\frac{n_{0'}}{n_0}$                               | 0,2 | 0,5 | 1   | 2   | 4   |
| $T_m' (^{\circ}\text{C})$                          | 178 | 159 | 146 | 133 | 122 |
| $T_m \text{ (gemessen } (^{\circ}\text{C}))$       | 180 | 150 | 146 | 160 | 160 |

Abbildung 54 zeigt graphisch die Änderung von  $T_m'$  und  $T_m$  (gemessen) mit der Fluenz.

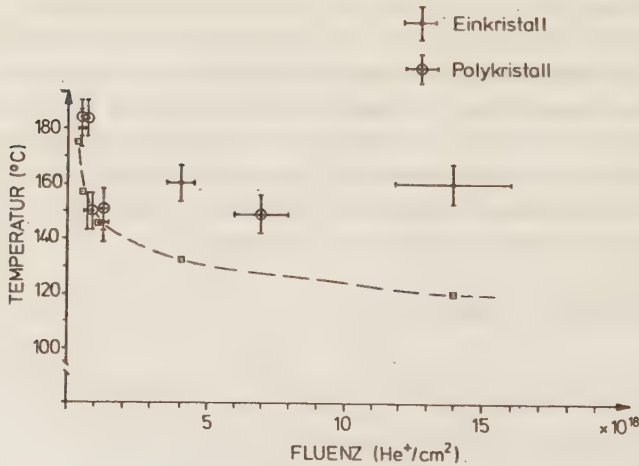


Abb. 54: Änderung der Maximumstemperatur mit der Fluenz.  
Die gestrichelte Kurve entspricht etwa dem Verlauf der Maximumstemperatur nach der Berechnung

Innerhalb der Unsicherheit ergibt sich bei kleinen Fluenzen bis  $F = 12 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  Übereinstimmung. Mit höheren Fluenzen weichen

die experimentellen Ergebnisse erheblich vom Verhalten einer Desorption zweiter Ordnung ab. Es läßt sich damit nicht zwischen einem Prozeß erster oder zweiter Ordnung unterscheiden.

Die Ursache dafür kann sein, daß die Form des Desorptionsmaximums durch nicht aufgelöste Freisetzungsprozesse verändert ist. Dies kann beispielsweise erfolgen, wenn nicht eine definierte Aktivierungsenergie notwendig ist, sondern eine Verteilung von Energien, um das Helium thermisch zu desorbieren.

Außerdem kann die Verzerrung aufgrund der apparativen Zeitkonstante die Form des Desorptionsmaximums verändern, womit eine Analyse nach der Methode von van Gorkum ebenfalls zu nicht eindeutigen Ergebnissen führt.

Ist die Desorptionskurve durch solche Einflüsse verformt, so kann nur die Maximumtemperatur zur Analyse herangezogen werden (Redhead 1962, Chen et al. 1970). Nimmt man wieder einen Frequenzfaktor von  $10^{13}$  1/s an, so erhält man für eine Desorption erster Ordnung aus Gleichung (34)

$$E_1 = 1,08 \text{ eV.}$$

Mit dieser Energie und Gleichung (33) wurde  $R(t) = R(T)$  berechnet, mit  $T = T_0 + \beta \cdot t$  - siehe Anhang.

In Abb. 55 ist  $R(T)$  gegen  $T$  (in  $^{\circ}\text{C}$ ) aufgetragen (gestrichelte Kurve).

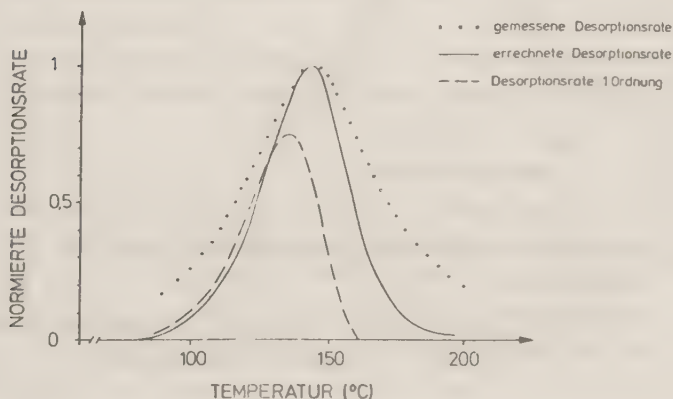


Abb. 55: Vergleich der gemessenen und berechneten Desorptionsrate mit und ohne Berücksichtigung der apparativen Verzerrung (s. Text)

Aufgrund der endlichen Zeitkonstante der Apparatur wird der Verlauf von  $R(T)$  verändert. Man erhält damit die durchgezogene Kurve (Abb. 54) (s. Anhang). Sie wurde auf das Maximum der zum Vergleich angegebenen gemessenen Kurve normiert.

Es zeigt sich, daß die experimentelle Kurve breitere Flanken besitzt, als für eine Desorption erster Ordnung vorausgesagt wird. Zusätzlich wird deutlich, daß die typische Form der Kurve erster Ordnung (langsamer Anstieg, schneller Abfall) durch die Apparatur zu einer symmetrischeren Kurve verzerrt wird. Außerdem erfolgt eine Temperaturverschiebung, die mit der in Abschnitt III.3 abgeschätzten übereinstimmt ( $8^{\circ}\text{C}$ ).

Eine bessere Annäherung an die gemessene Kurve erhält man, wenn man eine Gaußverteilung von Aktivierungsenergie für Ein-Sprung-Prozesse erster Ordnung zugrundelegt und damit die (durch die Apparaturen verzerrte) Desorptionskurve berechnet (Abb. 56) - siehe Anhang. Die Anpassung hängt hier von der angenommenen Breite der Energieverteilung und der häufigsten Aktivierungsenergie ab.

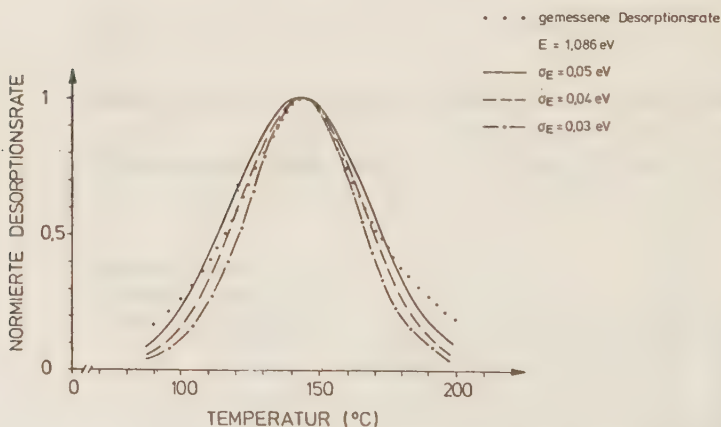


Abb. 56: Annäherung der gemessenen Desorptionsrate durch eine theoretische.

Es wurde dafür eine Gaußverteilung der Aktivierungsenergien mit den angegebenen Verteilungsbreiten angenommen.

Im Bereich kleiner ( $\lesssim 110^{\circ}\text{C}$ ) und hoher ( $\gtrsim 170^{\circ}\text{C}$ ) Temperaturen ergeben sich noch erhebliche Abweichungen der berechneten Kurve von der gemessenen. Der Grund dafür kann sein, daß die Aktivierungsenergieverteilung nicht gaußförmig ist.

Zusammenfassend kann keine endgültige Entscheidung über den Freisetzungsmechanismus anhand der vorliegenden Ergebnisse getroffen werden. Aus folgenden Gründen sind jedoch Ein-Sprung-bestimmte Prozesse wahrscheinlich.

(i) Diffusionsbestimmte Prozesse müßten eine Maximumtemperaturverschiebung bei 90, 150 keV Beschuß gegenüber 40 keV Beschuß ergeben, die nicht beobachtet wird. Außerdem ergeben die Desorptionsmessungen von Pontau et al. (1981, Tabelle 3) nach 4 keV Helium-Beschuß mit überkritischer Fluenz auf Nickel ebenfalls keine Verschiebung der Desorptionsmaximumtemperatur.

(ii) Das Desorptionsmaximum erscheint erst, wenn die kritische Fluenz überschritten ist, d.h. wenn Blister gebildet worden sind. Damit werden durch das Aufreißen der implantierten Probe innere Aufsammlplätze zu oberflächennahen Aufsammlplätzen. Von diesen ist Desorption aus dem Probeninneren ohne lange Diffusionswege möglich. Wird oberflächennah implantiert, so erhält man ein noch ausgeprägteres Maximum.

Dies sind zusätzlich Hinweise dafür, daß die Desorption im Temperaturbereich I im wesentlichen aus oberflächennahen Aufsammlzentren erfolgt.

Damit kann auch qualitativ verstanden werden, weshalb die Desorptionsmenge mit der Fluenz auch bei hohen Fluenzen ( $> 10^{18}$ ) noch steigt: Durch Zerstäubung (Rillenbildung) wächst der Anteil des implantierten Gases, der an der Oberfläche liegt.

Andere leichte Desorptionsmechanismen, wie zum Beispiel schnelle Diffusion entlang von Versetzungen, die die Oberfläche erreichen, sollten auch schon bei unterkritischen Fluenzen möglich sein.

(iii) Ob ein Ein-Sprung-Prozeß erster oder zweiter Ordnung vorliegt, kann jedoch nicht entschieden werden. Für kleine Fluenzen ( $< 1,2 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) deuten die Analysen auf einen Prozeß zweiter Ordnung hin. Bei höheren Fluenzen verhält sich das Desorptionsmaximum jedoch wie bei einem Prozeß erster Ordnung.

(iv) Nimmt man an, daß eine Desorption erster Ordnung vorliegt, so erhält man eine bessere Anpassung an die experimentelle Kurve, wenn man eine Verteilung von Aktivierungsenergien statt einer einzelnen Aktivierungsenergie voraussetzt.

#### VI.2.2 Temperaturbereich II: größer als 300°C

In diesem Temperaturbereich ist die Form der Desorptionsspektren sehr von der Fluenz abhängig. Die verschiedenen Maxima sind zum Teil schlecht aufgelöst oder stark verbreitert, sodaß eine Analyse wie unter VI.2.1 nicht sinnvoll erscheint.

Die Gleichartigkeit der Spektren für 40, 90 und 150 keV Beschuß (Abb. 40) sowie prinzipiell für die energieverteilte Implantation (Abb. 44) läßt vermuten, daß die Heliumfreisetzung nicht wesentlich von der Beschußenergie abhängt. Ebenso kann kein Einfluß der Korn-grenzen beim Polykristall auf die thermische Desorption festgestellt werden (Durchmesser der Körner  $\sim 100 \mu\text{m}$  > Implantationstiefe  $\sim 0,15 \mu\text{m}$ ).

Aus den Abb. 29, 30, 32, 33 wird deutlich, daß im Temperaturbereich ( $\gtrsim 500^\circ \text{C}$ ), in dem starke thermische Desorption beobachtet wird, zusätzlich Oberflächenveränderung in Form von thermischen Blistern, Löchern und Oberflächendiffusion von Nickel stattfindet.

Aus den TEM-Untersuchungen an heliumbeladenen Nickelproben von Roth und Jäger (1980) ist bekannt, daß im Temperaturbereich von  $460^\circ - 570^\circ \text{C}$  Blasenkoaleszenz ebenfalls besonders effektiv statt-

findet. In diesem Temperaturintervall zeigen die Desorptionsspektren nach überkritischem Beschuß ein Desorptionsmaximum (Abb. 29, 30, 39). Es liegt daher die Schlußfolgerung nahe, daß ein Teil des Heliums dadurch an die Oberfläche der Probe gelangt und desorbiert wird, daß Heliumblasen wachsen und sich an der Oberfläche öffnen.

#### a) Thermische Heliumfreisetzung aus Blasen

Blasenwachstum kann nach dem von Greenwood et al. (1959) und Evans (1977) vorgeschlagenen Mechanismus des Loop-punching erfolgen (s. II.3). Blasenwachstum durch Blasenkoaleszenz ist nach dem von Evans (1977) entwickelten Modell des Interbubble-Fracture denkbar. Für diese Mechanismen müssen die Gasblasen jedoch unter Überdruck stehen. Ist der Gasdruck im Gleichgewicht mit der Oberflächenspannung, was in Nickel bei Temperaturen über 200° C aufgrund der Beweglichkeit von Leerstellen (Wycisk et al. 1978) möglich ist, so erfolgt nach Barnes und Mazey (1963) Blasenwachstum nur durch Blasenkoaleszenz (siehe auch II.6). Dazu müssen die Blasen durch Diffusion oder eine Brown'sche Bewegung (Barnes et al. 1963) aufeinandertreffen. Nach Chen und Cost (1974) ist die Beweglichkeit von Blasen exponentiell abhängig vom Blasenradius  $r$  und der Temperatur  $T$  ( $\sim e^{-r\epsilon/kT}$ ) ( $\epsilon$  = Energie/Länge, Aktivierungsenergie für Blasenwanderung), sodaß große Blasen weniger beweglich sind. Dies führt dazu, wie sie auch an Aluminium bei 550° C experimentell feststellen, daß die Blasen ab einer bestimmten Größe nur noch sehr langsam wachsen, da die Anzahl der Zusammenstöße/Zeiteinheit aufgrund der geringen Beweglichkeit kleiner wird.

Nimmt man an, daß die Blasen einen bestimmten Radius benötigen, um die Probenoberfläche schneiden zu können, dann wird bei isochroner Erwärmung die Temperatur, bei der dieser Radius erreicht ist, mit sinkender Blasengröße und Blasendichte steigen.

Nach den TEM-Untersuchungen von Fenske (1979) an Nickel bleibt die Blasengröße bei der häufigsten Reichweite der Heliumionen während der Implantation bis zur kritischen Fluenz unverändert. Danach steigt sie aufgrund von Blasenkoaleszenz an. Die Blasendichte nimmt jedoch mit der Fluenz bis zur kritischen Fluenz zu und sinkt wegen der Blasenkoaleszenz, dann bei weiterem Beschuß. Das heißt, bis zur kritischen

Fluenz müssen die Blasen mit steigender Fluenz bei isochroner Temperung weniger weit wandern, um sich zusammenschließen zu können. Damit kann man qualitativ verstehen, weshalb zu kleineren Fluenzen hin die Temperatur für den Beginn der thermischen Desorption größer wird. Für Fluenzen, die kleiner als  $5 \times 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  sind, werden nach dieser Vorstellung bei Temperaturen unter ca.  $1000^\circ \text{C}$  dann keine genügend großen Blasen mehr gebildet, um die Oberfläche zu schneiden. Hinweise auf thermische Blasenkoaleszenz geben auch die zusätzlichen dunklen Kontraststellen, die man im REM auf der Oberfläche von mit Helium beschossenen Proben findet (Abb. 34). Interpretiert man diese als die Folge von Hohlräumen unter der Oberfläche, so kann beim Aufbrechen von Blasen an der Oberfläche damit auch Helium aus einem System von zusammenhängenden Heliumblasen freigesetzt werden.

#### b) Thermische Blisterbildung

Das Verhalten der Heliumblasen bei Erwärmung der Probe wurde auch von Johnson und Mazey (1980a) an mit 30 keV Heliumionen beschossenen Kupferfolien in situ im TEM untersucht. Die Heliumkonzentration in Kupfer betrug dabei - ähnlich wie bei den hier vorliegenden Messungen an Nickel - etwa 30 %. Dabei zeigte sich, daß die Zusammenlagerung von Blasen zur thermischen Blisterbildung führt und dabei Gas entweicht. Aufbrechen von Gasblasen an der Oberfläche beobachten sie als einen häufigen Prozeß, der zur Folge hat, daß Löcher in der Probe gebildet werden, die zum Teil wieder ausheilen.

Einen Zusammenhang zwischen thermischer Heliumemission und thermischer Blisterbildung zeigt das gleichzeitige Ansteigen von Streulichtintensität und Desorptionsrate beim Erwärmen nach unterkritischem Beschuß (Abb. 29, 30, 41). Legt man die im Abschnitt VI.1 gemachte Modellvorstellung über die Blisterbildung zugrunde, so wird dabei durch die thermische Blasenkoaleszenz die Ribildung bei  $R_p$  verursacht, welche zur Ablösung des späteren Blisterdeckels von der Unterlage notwendig ist. Die Aufwölbung erfolgt dann aufgrund der nicht relaxierten integralen lateralen Spannung in dieser abgelösten Schicht (Risch et al. 1977, EerNisse und Picraux 1977).



Gleichung (xx) gilt für Raumtemperatur. Berücksichtigt man hier die Temperaturabhängigkeit des Elastizitätsmoduls und der kritischen Bruchspannung (Espe 1960), so erhält man bei  $600^{\circ}\text{C}$  aus Gl. (xx) einen um etwa 20 % größeren Durchmesser  $d$ . Man erkennt, daß die Werte aufgrund der empirischen Beziehung ähnlich den gemessenen nach Zimmertemperaturbeschuß sind.

Bei höheren Temperaturen werden die gemessenen Durchmesser sehr viel besser durch die nach dem Spannungsmodell berechneten Werte angenähert. Dies kann als Unterstützung des Spannungsmodells für die Blisterbildung gewertet werden, wenn man annimmt, daß bei höheren Temperaturen durch effektivere Blasenkoaleszenz eine vollständigere Ablösung der implantierten Schicht erfolgt. Damit ist dann eine bessere Annäherung an die Voraussetzung für Blisterbildung nach der Theorie der elastischen Platten gegeben, welche von einer bis auf den Rand völlig abgelösten Platte ausgeht.

Ist diese Ablösung nicht vollständig, etwa aufgrund von restlichen Verbindungen in Form von Stegen zwischen dem späteren Blisterdeckel und dem darunterliegenden Material, dann führt dies nach Wolfer (1980) zu einem kleineren Blisterdurchmesser.

Möglicherweise ist dies der Grund für die Bildung kleinerer Blister, die man bei Zimmertemperaturimplantation erhält.

### c) Implantation bei hohen Temperaturen ( $> 300^{\circ}\text{C}$ )

Nach den Messungen von Fenske (1979) vergrößert sich der Blasendurchmesser bei höheren Beschußtemperaturen ( $500^{\circ}\text{C}/900^{\circ}\text{C}$ ) gegenüber Zimmertemperaturbeschuß. Bei  $900^{\circ}\text{C}$  findet er eine Vergrößerung der Blasendichte an der Oberfläche der Probe.

Die experimentellen Ergebnisse in Abb. (27) bei einer Beschußtemperatur von  $720^{\circ}\text{C}$  zeigen, daß keine Blister mehr gebildet werden. Stattdessen erhält man Löcherbildung. Daraus kann man schließen, daß Helium auch während des Beschusses durch die Öffnung von Blasen an der Oberfläche reemittiert wird.

Möglicherweise werden die oszillierenden Reemissionsratenmaxima während des Beschusses bei  $950^{\circ}\text{C}$  (Abb. 26) dadurch erzeugt, daß nach bestimmten Fluenzintervallen ( $\sim 4 \times 10^{17} \text{ He}^{+}/\text{cm}^2$ ) Blasen die Oberfläche erreichen und Helium abgeben. Bereits zu Beginn der Implantation bei  $950^{\circ}\text{C}$  (Abb. 26) ist jedoch die Reemissionsrate deutlich höher als

bei kleineren Beschußtemperaturen. Es wird daher zusätzlich zu den Blasen ein weiterer Reemissionsmechanismus existieren.

Nach Philipps (1980) kann dies möglicherweise mittels durch Leerstellen gehinderte Zwischengitterdiffusion erfolgen (Diffusionslänge bei  $950^{\circ}\text{C}$  und  $1\text{ s} \sim 17\text{ }\mu\text{m}$ ).

In den Abbildungen 25 und 26 erkennt man in den Reemissionsratenspektren, daß zu Beginn der Implantation die Reemissionsrate zunächst sinkt und nach einer Fluenz von ca.  $2 \times 10^{17}\text{ He}^{+}/\text{cm}^2$  dann ihr Minimum erreicht. Bei höheren Temperaturen werden danach effektivere Senken für Helium erst bei höheren Fluenzen ( $\sim 2 \times 10^{17}\text{ He}^{+}/\text{cm}^2$ ) gebildet.

Da bei höheren Beschußtemperaturen sich die Blasenstruktur (Größe, Dichte) ändert (Fenske 1979, Roth et al. 1980), kann man bei blasenbestimmter thermischer Desorption erwarten, daß sich die Form des Desorptionsspektrums im Vergleich zu dem nach Zimmertemperaturbeschuß ebenfalls verändert (Abb. 45, 38).

In der Abb. 38 zeigt sich, daß dies stattfindet. Die Spektren besitzen im Vergleich zu den nach Zimmertemperaturbeschuß bei anderen Temperaturen maximale Desorptionsraten.

#### d) Andere thermische Freisetzungsmechanismen

Da nach den Ausführungen in Abschnitt III.3 nicht bekannt ist, welcher Anteil des Heliums im Nickel in Blasen sitzt, besteht auch die Möglichkeit, daß Helium zusätzlich aus Leerstellen, Helium-Leerstellenkomplexen und Versetzungen freigesetzt wird. Nach Kornelsen wird bei  $430^{\circ}\text{C}$  Helium aus einer doppelt besetzten Leerstelle und bei  $580^{\circ}\text{C}$  aus einer einfach besetzten Leerstelle Helium desorbiert. Bei den niedrigsten, in der vorliegenden Arbeit für die Implantation in Nickel verwendeten Fluenzen ( $< 3 \times 10^{17}\text{ He}^{+}/\text{cm}^2$ ) desorbiert bei diesen Temperaturen meßbar allerdings kein Helium. Dies kann einerseits bedeuten, daß die von Kornelsen gefundene Ein-Sprung-bestimmte Desorption aus diesen Defekten hier nicht der bestimmende Prozeß ist, sondern die Diffusion durch den Kristall mit möglichem Wiedereinfang an Aufsammlplätzen. Da Helium hier längere Wege im Kristall bis zur Oberfläche zurücklegen muß als bei den Experimenten von Kornelsen ( $\sim 1\text{ nm}$ ), kann die Temperatur, bei der es die Probe verläßt, nach oben verschoben sein.

Andererseits besteht die Möglichkeit, daß diese Defektkonfiguration bei den verwendeten hohen Fluenzen nicht häufig genug vertreten ist, sondern als Keim für die Bildung von Komplexen oder Blasen diene.

Hinweise darauf, daß diffusionsbestimmte Prozesse nicht dominieren, sondern stattdessen Ein-Sprung-Prozesse für die Heliumdesorption bestimmend sind, geben die Desorptionsspektren, die man erhält, wenn stufenweise bis zu bestimmten Temperaturen ( b , c , d in Abb. 36) erwärmt wird und man zwischen zwei Erwärmungsprozessen auf Zimmertemperatur abkühlt. Die nachfolgende Desorption erfolgt dabei immer erst dann, wenn die zuerst erreichte Temperatur überschritten wird.

Bei diffusionsbestimmter Desorption würde man erwarten, daß Helium bereits bei niedrigeren Temperaturen freigesetzt wird. Thomas und Sisson (1981) finden ein derartiges Desorptionsverhalten auch bei  $^3\text{He}$  in Edelstahl, das über den  $\beta$ -Zerfall von gelöstem Tritium in die Proben eingelagert wurde.

Bisher wenig untersucht ist der Zusammenhang zwischen der thermischen Veränderung in Nickel (Oberflächendiffusion, Rekristallisation) und der Heliumdesorption. Oberflächendiffusion kann bei der Blasenbewegung zur Desorption beitragen (Barnes et al. 1963), und an der Probenoberfläche zur Öffnung von oberflächennahen Blasen führen. Inwieweit Rekristallisation zur thermischen Heliumdesorption beiträgt, ist nicht bekannt. Nach Espe (1960) liegt die Rekristallisationsschwelle für hochreines Nickel bei  $370^{\circ}\text{C}$ , also gerade im Minimum der thermischen Desorption bei Zimmertemperaturbeschuß mit überkritischen Fluenzen. Verunreinigungen können die Rekristallisationstemperatur jedoch erheblich anheben ( $99,91\% \text{ Ni} \rightarrow 480^{\circ}\text{C}$ ,  $\text{Ni} + 0,8\% \text{ Mg} \rightarrow 640^{\circ}\text{C}$ ).

e) Zusammenfassung

Die Desorption von Helium aus Nickel im Temperaturbereich über  $300^{\circ}\text{C}$  kann aufgrund der Oberflächenveränderungen und des Vergleichs zu TEM-Beobachtungen anderer Autoren zum Teil durch die Koaleszenz von Blasen und deren Öffnung an der Oberfläche beschrieben werden. Damit kann man eine qualitative Erklärung geben für die fluenzabhängige Verschiebung der Temperatur, bei der thermische Desorption beginnt.

Hinweise auf Ein-Sprung-bestimmte Desorptionsprozesse erhält man aus dem Desorptionsverhalten von Helium bei isochroner Temperung in Intervallen mit zwischenzeitlicher Abkühlung.

Bei Implantationstemperaturen, die größer als ca.  $700^{\circ}\text{C}$  sind, erhält man wahrscheinlich auch Heliumreemission während des Beschusses durch an der Oberfläche sich öffnende Blasen. Diffusion von Helium nach dem von Philipps (1980) angegebenen Mechanismus kann ebenfalls zur Heliumreemission während der Implantation bei höheren Temperaturen ( $\sim 950^{\circ}\text{C}$ ) beitragen.

Die Deckeldurchmesser thermischer Blister bzw. von Blistern, die während der Implantation bei höheren Temperaturen ( $\sim 250^{\circ}\text{C}$ ) entstanden sind, zeigen gegenüber Blistern, die während der Implantation bei Zimmertemperatur sich gebildet haben, eine bessere Annäherung an den Durchmesser, den man aus der Beziehung  $d \sim t^{1,5}$  erhält. Dies kann als weitere Unterstützung des Spannungsmodells als Beschreibung für die Blisterbildung gewertet werden.

### VI.3 Zusammenfassende Diskussion

#### a) Heliumreemission und Blisterbildung

Aufgrund des Vergleichs des experimentellen Reemissionsratenspektrums mit der Veränderung des Heliumtiefenprofils während der Implantation von 40 keV Helium in Nickel sowie dem Aufsammel- bzw. Reemissionsmodell nach Doyle et al. (1980) kann die Heliumreemissionsrate bei Fluenzen, die größer als die kritische Fluenz für Blisterbildung sind, in zwei Anteile zerlegt werden:

- (i) Reemission aufgrund lokaler Sättigungseffekte innerhalb der Reichweite der Heliumionen,
- (ii) Zusätzliche Reemission, die zum Abbau der lokalen Heliumübersättigung führt, welche beim Beschuß bis zur kritischen Fluenz bei der häufigsten projizierten Reichweite entsteht.

Aus der Analyse der Reemissionsratenspektren ergibt sich, daß mehr Helium bei der Blisterbildung frei wird, als auf die Gesamtfläche aller Blister geschossen wurde. Damit, und mit der experimentellen Beobachtung, daß Blisterbildung und eine verstärkte Reemissionsrate gleichzeitig bei einer kritischen Fluenz beginnen, kann gefolgert werden, daß Helium wahrscheinlich in einer Tiefenzone um die häufigste projizierte Reichweite auch aus der Umgebung eines Blisters zu diesem gelangt.

Diese Schlußfolgerung zusammen mit der Beobachtung, daß sich Blister auf der Probenoberfläche berühren, steht im Widerspruch zu der Vorstellung einer gasdruckgetriebenen Blisterentstehung. Weiterhin kann das Gasdruckmodell nicht erklären, weshalb während der Implantation die Blisterbildungsrate absinkt, ohne daß die Probe vollständig gesättigt ist.

Auf der Grundlage des lateralen Spannungsmodells nach Risch (1977) und EerNisse und Picraux (1977) kann mit Hilfe einer erweiterten Modellvorstellung über die Blisterentwicklung auf der Probenoberfläche eine qualitative Erklärung des beobachteten Zusammenhangs zwischen Reemissionsrate und Blisterbildungsrate während der Implantation angegeben werden.

Aus dieser erweiterten Modellvorstellung kann abgeleitet werden, daß bei kleinen Beschußenergien (4 keV) die maximale Bedeckung der Oberfläche mit Blistern in einem kürzeren Fluenzintervall erfolgen muß als bei höherer Energie ( $\geq$  40 keV). Experimentell wird dies auch beobachtet.

Die Veränderung des Reemissionsverhaltens sowie der Blistergröße bei höheren Beschußtemperaturen kann ebenfalls mit Hilfe dieser Modellvorstellung qualitativ beschrieben werden.

## b) Thermische Desorption

Die Desorptionsspektren zeigen keine wesentlichen Abhängigkeiten von der Beschußenergie. Erhebliche Änderungen ergeben sich jedoch bei verschiedenen Fluenzen und Beschußtemperaturen.

Bei Zimmertemperaturbeschuß mit überkritischer Fluenz erhält man bei 150° C ein vom restlichen Spektrum deutlich getrenntes Desorptionsmaximum. Der Vergleich mit verschiedenen Desorptionsmechanismen ergibt, daß das Helium in diesem Desorptionsmaximum wahrscheinlich aufgrund eines Ein-Sprung-bestimmten Desorptionsprozesses den Festkörper verläßt. Die experimentelle Beobachtung der Veränderung dieses Maximums mit der Fluenz zeigt an, daß Helium dabei wahrscheinlich aus oberflächennahen Aufsammelzentren freigesetzt wird.

Die Desorption bei höheren Temperaturen ( $> 300^{\circ}$  C) kann mit Hilfe der Beobachtung der Blasenentwicklung in mit Helium beschossenen Proben bei Temperaturerhöhung beschrieben werden. Die Veränderung der Oberflächenstruktur (Löcherbildung) weist darauf hin, daß Helium dadurch thermisch freigesetzt wird, daß sich Blasen an der Oberfläche der Probe öffnen. Zusätzlich findet man auch Hinweise für Desorptionvorgänge, die durch Ein-Sprung-Prozesse bestimmt sind.

## VII. A n h a n g

Berechnung der Desorptionsrate erster Ordnung sowie des Einflusses der Desorptions-Meßapparatur auf die Form des Desorptionsmaximums bei 150° C.

Die Desorptionsgleichung für Ein-Sprung-Prozesse lautet

$$R(t) = -\frac{dn}{dt} = n^r \cdot v_r \cdot \exp(-E/k \cdot T) \quad <1>$$

$n$  = Flächenbelegung (Teilchen/cm<sup>2</sup>)

$v_r$  = Desorptionskonstante

$E$  = Aktivierungsenergie

$T$  = absolute Temperatur

$k$  = Boltzmannfaktor

Für den Druckverlauf in der Probenkammer aufgrund der Gasquelle

$R(t) = R(T)$ :

$T = T_0 + \beta \cdot t$

$\beta$  = Temperaturgeschwindigkeit

$T_0$  = Anfangstemperatur

$t$  = Zeit

gilt

$$\frac{dp}{dt} + \frac{p}{\tau} = C \cdot R(t) \quad <2>$$

$p$  = Kammerdruck - Untergrunddruck

$\tau$  = Zeitkonstante der Apparatur

$C = \frac{k \cdot T_0}{v_0} \cdot A$

$V_0$  = Kammervolumen

$A$  = Desorbierende Fläche

Normierung (nach Redhead 1962):

$$\text{für } \tau \rightarrow \infty \rightarrow \frac{dp}{dt} = C \cdot R(t)$$

$$p_{\max} = C \cdot \int R(t) dt = C \cdot n_0 \quad <3>$$

$n_0$  = Flächenbedeckung zur Zeit  $t = 0$ .

Division von  $\langle 2 \rangle / \langle 3 \rangle$

$$\text{mit } \frac{p}{p_{\max}} = y,$$

$$\rightarrow y + \frac{y}{\tau} = R(t)/n_0 \quad \langle 4 \rangle$$

Integriert man  $\langle 1 \rangle$  von  $T_0$  bis  $T$  und macht man dabei die Vernachlässigung  $T^2 \gg T_0^2$ , so erhält man für  $r = 1$  (Redhead 1962):

$$n = n_0 \exp\left(-\frac{v(1)^k}{\beta \cdot E} T^2 \cdot \exp(-E/kT)\right);$$

mit  $\langle 1 \rangle$  gilt dann:

$$R(T)/n_0 = v(1) \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT} + \frac{v(1)^k}{\beta E} T^2 \exp(-E/kT)\right) \equiv g(T) \quad \langle 5 \rangle$$

Integration von  $\langle 4 \rangle$  mit:  $y(t=0) = 0$ ,  $T = T_0 + \beta \cdot t$  ergibt damit:

$$\begin{aligned} y(T) &= \exp\left(\frac{T_0 - T}{\tau \cdot \beta}\right) \frac{1}{\beta} \int_{T_0}^T g(T') \exp\left[\frac{(T' - T_0)}{\beta \cdot \tau}\right] \cdot dT' \quad \langle 6 \rangle \\ &= \exp\left(\frac{T_0 - T}{\tau \cdot \beta}\right) \frac{v(1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'} + \frac{v(1)^k}{\beta E} T'^2 \exp(-E/kT')\right) \cdot \exp\left(\frac{(T' - T_0)}{\beta \cdot \tau}\right) dT'. \end{aligned}$$

Die Funktion  $\langle 5 \rangle$  ergibt die Desorptionsrate erster Ordnung und die Funktion  $\langle 6 \rangle$  die Desorptionsrate erster Ordnung verändert durch die endliche Zeitkonstante der Apparatur.

Funktion  $\langle 6 \rangle$  wurde numerisch mit einem Tischcomputer (HP 97) berechnet und wie  $\langle 5 \rangle$  in Abb. 55 aufgetragen.

Nimmt man eine Gaußverteilung der Aktivierungsenergien um  $E_0$  an:

$$\phi(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_E^2}} \cdot \exp\left(-\frac{(E-E_0)^2}{2\sigma_E^2}\right)$$

so erhält man zusammen mit  $\langle 5 \rangle$

$$R'(T)/n_0 = \frac{v(1)}{\sqrt{2\pi\sigma_E^2}} \int_0^\infty \exp\left(-\frac{(E-E_0)^2}{2\sigma_E^2}\right) \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT} + \frac{v(1)^k}{\beta E} T^2 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right) dE.$$

mit  $\alpha = 0.05$  gilt:

$$J = \int_0^1 \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{t^2}{\sigma^2}\right) \frac{1}{\sigma} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{t^2}{\sigma^2}\right) dt = \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{1}{\sigma^2}\right) \frac{1}{\sigma} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^1 \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{t^2}{\sigma^2}\right) dt = \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{1}{\sigma^2}\right) \frac{1}{\sigma} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left[ \sqrt{\frac{\pi}{2}} \operatorname{erf}\left(\frac{t}{\sigma}\right) \right]_0^1 = \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{1}{\sigma^2}\right) \frac{1}{\sigma} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sigma}\right) = \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{1}{\sigma^2}\right) \frac{1}{\sigma} \frac{1}{2} \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sigma}\right)$$

Funktion  $J$  wurde für  $\sigma = 0.25, 0.5, 1.0$  numerisch berechnet und in Abb. 56 aufgetragen.

## LITERATUR

- Andersen, H.H., J.F. Ziegler, "Hydrogen Stopping Powers and Ranges in all Elements", Pergamon Press, N.Y., Toronto, Oxford, Sydney, Frankfurt, Paris (1977)
- Barnes, R.G., D.J. Mazey, Proc. Royal Soc. A275, 47 (1963)
- Baskes, M.J., W.O. Wilson, Rad.Eff. 37, 93 (1978)
- Baskes, M.J., C.F. Melius, W.O. Wilson, "Solubility and Diffusivity of Hydrogen and Helium at Dislocations and in the Stress Field Near a Crack Tip" (1981), wird veröff. in Proc. TMS-AIME Symp. Ion Interact. Pot. and Computer Simul. Defects in Metals
- Bauer, W., W.O. Wilson, "Radiation Induced Voids in Metals", Eds. J.W. Corbett, L.S. Barzileiio, U.S.A. E.C. Proc. of the 1971 Int. Conf. Albany N.Y., June 9-11, 230 (1971)
- Bauer, W., G.J. Thomas, J.Nucl.Mat. 42, 96 (1972)
- Bauer, W., G.J. Thomas, Proc. Int. Conf. "Defects and Defect Clusters in b.c.c. Metals and their Alloys", Nat. Bureau of Standards, Gaithersburg, Maryland, 285 (1973), Trans. AME San Francisco 136, (1973)
- Bauer, W., G.J. Thomas, J.Nucl.Mat. 47, 241 (1973)
- Bauer, W., G.J. Thomas, J.Nucl.Mat. 53, 127 (1974)
- Bauer, W., G.J. Thomas, J.Nucl. Mat. 63, 299 (1976)
- Bauer, W., K.L. Wilson, C.L. Bisson, L.G. Haggmark, R.J. Goldston, J.Nucl. Mat. 76/77, 396 (1978)
- Bauer, W., J.Nucl. Mat. 76/77, 3 (1978)
- Behrísch, R., Vacuum 10, 250 (1967)
- Behrísch, R., J. Böttiger, W. Eckstein, U. Littmark, J. Roth, B.M.U. Scherzer, Appl. Phys. Lett. 27/4, 199 (1975) a)
- Behrísch, R., J. Böttiger, W. Eckstein, J. Roth, B.M.U. Scherzer, J.Nucl. Mat. 56, 365 (1975) b)
- Behrísch, R., M. Rísch, J. Roth, B.M.U. Scherzer, Proc. 9th Symp. Fusion Technol., Garmisch-Partenkirchen (FRG) 14-18 June 531 (1976) a)

- Bethe, H.A., Ann.Phys., 5, 325 (1930)
- Biersack, J.P., D.Fink, R.A. Henkelmann, K. Müller, J.Nucl. Mat. 85&86, 1165(1979)
- Bisson, C.L., W.D. Wilson, "Atomistics of Tritium and <sup>3</sup>Helium in Metals" (1980)  
wird veröffentlicht in: Proc. Conf. on Tritium Techn. in Fission, Fusion and Isotopic Applications, Dayton, Ohio, April 1980
- Blewer, R.S., J.K. Maurin, J.Nucl. Mat. 44, 260 (1972)
- Blewer, R.S., "The Applications of Ion Beam to Metals", Eds. S.T.Picraux, E.P. EerNisse, F.C.Vook, Plenum Press, N.Y., 557 (1974)
- Bloch, F., Ann. Phys., 16, 285 (1933)
- Bohr, N., Kgl. Danske Videnskab., Selskab, Mat. Fys.Medd. 18/8 (1948)
- Braganza, C.M., S.K. Erents, E. Hotston, G.M. McCracken, J. Nucl. Mat. 76&77, 298 (1978)
- Carter, G., Vacuum 12, 245 (1962)
- Caspers, L.M., H.van Dam, A.van Veen, Delft-Progress, Rep. Ser. A 1, 39 (1974)
- Chen, K.Y., J.R. Cost, J.Nucl. Mat. 52, 59 (1974)
- Chen,R., S.A.A. Winer, J.of Appl.Phys. 41/13, 5227, (1970)
- Cohen, S.A., G.M. McCracken, J.Nucl. Mat. 89, 157 (1979)
- Cost, J.R., R.G. Hickman, J.Vac.Sci. Techn. 12/1, 516 (1975)
- Das, S.K., M. Kaminsky, J.Appl. Phys. 44, 25 (1973)
- Das,S.K., M.Kaminsky in "Radiation Effects on Solid Surfaces",  
Ed. M. Kaminsky, Advances in Chemistry Series 158 (1976)
- Das, S.K., M. Kaminsky, G.Fenske, J.Nucl. Mat. 76&77, 215(1978)
- De Hosson, J.Th.M., A.W. Sleeswyk, L.M.Caspers, W.van Hengten,  
A.van Veen, Solid State Commun. 18, 479 (1976)
- Donnelly, S.E., D.G. Armour, Vacuum 27/1, 21 (1976)
- Donnelly, S.E., Vacuum 28/4, 163(1978)
- Donnelly, S.E., J.C.Rife, J.M. Gilles, A.A. Lucas, J.Nucl. Mat. 93&94, 767 (1980)
- Doyle, B.L., W.R. Wampler, D.K. Brice, S.T.Picraux, J.Nucl. Mat. 93&94, 551 (1980)

- Driesch, J. von den, Dissertation TU Aachen (1980)
- Eckstein, W., R.Behrish, J. Roth, Ion Beam Surface Layer Analysis Vd.2  
Eds. O.Meyer, G.Linker, F.Käppeler, Plenum Press 821 (1976)
- Eckstein, W., H. Verbeek, "Data on Light Ion Reflection", IPP-Report  
9/32 (1979)
- Edwards,(Jr.),D., Vacuum 26/3, 91 (1976)
- EerNisse, E.P., S.T. Picraux, J.Appl.Phys. 48,9 (1977) Erratum: 48, 2648 (1977)
- Eernts, S.K., G.M.McCracken, Rad.Eff. 18, 191 (1973)
- Eernts, S.K., G.M. McCracken, J. Vince, J.Phys. D: Appl. 11, 227 (1978)
- Espe, W., "Werkstoffkunde der Hochvakuumtechnik, Bd. 1, VEB Deutscher  
Verlag der Wissenschaften, Berlin (1960)
- Evans, J.H., Nature 256, 299, (1975)
- Evans, J.H., J. of Nucl. Mat. 68, 129 (1977)
- Evans, J.H., J. of Nucl. Mat. 76&77 , 228 (1978)
- Evans, J.H., J. of Nucl. Mat. 93&94, 745, (1980)
- Evans, J.H., A. van Veen, L. M. Caspers, Sript Metal., 15, 323 (1981)
- Farell, G., G. Carter, Vacuum 17/1, 15, (1966)
- Fenske, G.R., Diss. University of Illinois, Urbana (1979)
- Fermi, E., E.Teller, Phys.Rev. 72, 399 (1947)
- Firsov, O.,E., Sov. Phys. JETP, 36/9, 1076 (1959)
- Gorkum, A., A. van, J. of Appl.Phys. 51/5, 2594, (1980)
- Greenwood, G.W., A.J.F. Foreman, D.E.Rimmer, J.of Nucl. Mat. 1, 305(1959)
- Hotsten, E.S., J.of Nucl. Mat. 88, 279, (1980)
- Ivanov, L.I., A.P. Komissarov, N.A. Machlin, V.N. Melnikov, V.F. Chebaevsky,  
J.of Nucl. Mat. 76&77, 211 (1978)
- Institut für Rasterelektronenmikroskopie, Dr. Klingele, 1980,  
8000 München 22, Adelgundenstr. 8

- Johnson, P.B., T.R. Armstrong, Nucl.Instr. & Meth. 148, 85, (1978)
- Johnson, P.B., D.J. Mazey, Nature, 281/5730, 359 (1979)
- Johnson, P.B., D.J.Mazey, J.Nucl.Mat. 93&94, 721, (1980)
- Johnson, P.B., D.J. Mazey, Rad.Eff. 53, 195, (1980) a)
- Kamada, K., Y.Higashida, J.of Appl.Phys. 50/6 4131 (1979)
- Kaletta, D., J.of Nucl. Mat. 63,347, (1976)
- Kelly, R., H. Matzke, J.of Nucl. Mat. 20, 171, (1966)
- Kinchin, G.H., R.S. Pease, Rep. Proc. Phys. 18, 1, (1955)
- Kornelsen, E.V., Rad. Eff. 13, 227 (1972)
- Kornelsen, E.V., D.E. Edwards (Jr.), "Applications of Ion Beams to Metals", Eds.: S.T. Picraux, E.P. EerNisse, V.L. Vook, Plenum Press N.Y./London, 1974
- Krotov, V.I., S.Y. Lebedev, Atomnaya Energiya 44/4, 355 (1978)
- Langley, R.A., "Radiation Effects and Tritium Technology for Fusion Reactors", Eds.: J.Watson, F.W.Wiffen, Oak Ridge, 158, (1976)
- Langley, R.A., R.S.Blewer, P.S. Piercy, J.of Nucl. Mat. 76&77, 261,(1978)
- Lehmann, Ch. , "Interaction of Radiation with Solids and Elementary Defect Production", Eds: S.Amelinckx, R. Gevers,J.Nihoul, North Holland Publ. Comp., Amsterdam/N.Y./Oxford, 1977
- Leteurtre, L., "Site Characterization and Aggregation of Implanted Atoms in Materials", 265, Eds.: A.Perez, R.Coussement, Plenum Press, N.Y./London, 1980
- Lidiard, A.B., R.S.Nelson, Phil. Mag. 17/146, 425, (1968)
- Lindhard, J., Kgl. Danske Videnskab. Selskab., Mat.Fys. Medd. 28/8 (1954)
- Lindhard, J., M.Scharff, Phys.Rev. 124, 128 (1961)
- Lindhard, J., M.Scharff, H.E. Schiøtt, Kgl. Danske Videnskab.Selskab, Mat.Fys. Medd. 33/14 (1963)
- Littmark, U., G.Maderlechner, R.Behrisch, B.M.U.Scherzer, M.T.Robinson, Nucl.Instr.&Meth. 132, 661 (1976)

- Lutz, H., R.Sizmann, Phys. Letters 5, 113 (1963)
- Lutz,H., R.Sizmann, Z. Naturforschung 19/2, 1079, (1964)
- MARLOWE, Robinson, M.T., J.M. Torrens, Phys.Rev. B9, 5008 (1974)
- Martynenko, V.Y., Rad.Eff., 45, 93, (1979)
- Mayer, J.W., "Ion Implantation in Semiconductors", 19, Academic Press (1970 )
- Mazey, D.J., B.Eyre, J.H.Evans, S.K. Erents, G.M.McCracken, J. of Nucl. Mat. 64, 145 (1977)
- McCracken, G.M., Japan. J.Appl.Phys. Suppl. 2, pt.1, 269 (1974)
- Milacek, L.H., R.D. Daniels, J.H. Cooley, J.Appl.Phys. 39, 2803 (1968)
- Mills, R.L., D.H. Liebenberg, J.C.Bronson, Phys.Rev. B 21, 5137 (1980)
- Möller,W., "Berechnung der Tiefenauflösung" private Mitteilung a, (1980)
- Möller, W., "Berechnung der Aufsammlkurven", private Mitteilung b, (1981)
- Nelson, R.S., E.W. Etherington, M.F. Smith, U.K.A.E.A. Report TRG 2152 (D) (1972)
- Ortec, Katalog 1976
- Philipps, V., Dissertation TH Aachen (1980)
- Pisarev, A.A., V.G.Tel'kovskii, Sov. Atom Energy 38, 192 (1975)
- Pontau, A.E., W.Bauer, J.Nucl.Mat. 93&94, 564, (1980)
- Pontau, A.E., C.B. Layne, W. Bauer, Proc. 2nd Top. Meeting on Fusion Reactor Materials, Seattle, WA, 1981
- Primak, W., J.Luthra, J.Appl.Phys., 37, 2287 (1966)
- Rantanen, R.O., A.L. Moen, E.E. Donaldson, J.of Vac.Science and Techn. 7/1, 18(1970)
- Redhead, P.A., Vacuum 12, 203 (1962)
- Reed, D.J., Rad.Eff. 31, 129 (1977)
- Reed-Hill, R.E., "Physical Metallurgy Principles", D. von Nostrand Company, N.Y/Cincinnati/Toronto/London/Melbourne, 2nd Edition, 1973
- Reimer,L., G.Pfefferkorn,"Rasterelektronenmikroskopie", Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg/N.Y., 1973

- Risch, M., J.Roth, B.M.U.Scherzer, Proc. Int.Symp."Plasma Wall Interaction", Jülich 18.10.-22.10.1976, Pergamon Press, 391 (1977)
- Risch, M., Dissertation, LMU München, 1978
- Roth, J., Dissertation, TU München, 1974
- Roth, J., R.Behrisch, B.M.U.Scherzer, J.of Nucl. Mat. 57, 365 (1975)
- Roth, J., Conf. Series 28, The Institute of Physics, London, 280 (1975)
- Roth, J., W.Jäger, J.of Nucl. Mat. 93&94, 756 (1980)
- Rowlinson, J.S., Mol.Phys. 7, 349 (1963/64)
- Saidoh, M., K.Sone, R.Yamada, K.Nakamura, J.Nucl.Mat. 96, 358 (1981)
- Sass, S.L., B.L. Eyre, Phil.Mag. 27, 1447 (1973)
- Scherzer, B.M.U., H.L. Bay, R.Behrisch, P.Bjergesen, J.Roth, Nucl.Instr.& Meth. 157, 75 (1978)
- Scherzer, B.M.U., "Surface Topography due to Light Ion Implantation" in: Sputtering by Bombardment II, Ed.: R.Behrisch: "Topics in Appl.Phys.", Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg/N.Y., wird veröffentlicht 1982
- Schiøtt, H., Kgl.Danske Videnskab, Selskab., Mat.Fys.Medd. 35, 9 (1966)
- Schulz, R., Dissertation TU München 1981
- Sigmund, P., Rad. Eff. 1, 15 (1969)
- Sone, K., M.Saidoh, R.Yamada, H.Ohtsuka, J.Nucl.Mat. 76&77, 240, (1978)
- Speight, M.V., J.Nucl.Mat. 12/2, 216 (1964)
- Staudenmaier, G., J.Roth, R.Behrisch, J.Bohdansky, W.Eckstein, P.Staib, S.Matteson, S.K.Erents, J.Nucl.Mat. 84, 149 (1979)
- St.Jacques, R.G., G.Veilleux, J.G.Martel, B.Terreault, Rad.Effects 47, 223, (1980)
- St.Jacques, R.G., G.Veilleux, 9th Int. Conf. on Atomic Collisions, July 6-10, 1981, wird veröffentlicht
- Terreault, B., G.Ross, R.G.St.-Jacques, G.Veilleux, J.of Appl.Phys. 51, 1491 (1980)
- Thomas, E.J., K.L.Wilson, ANS Transactions 27, 273 (1977)

- Thomas, G.J., R.D.Sisson, Proc. Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications, Am.Nucl.Soc. Nat.Top. Meeting Dayton, Ohio, 29.4.-1.5., 85 (1980)
- Thomas, G.J., R.Bastaz, "Direct Evidence for Spontaneous Precipitation of Helium in Metals", wird veröffentlicht in J. of Appl.Phys. 1981
- TRIM, Biersack, J.P., L.G.Haggmark, Nucl.Instr.& Meth. 174, 257, (1980)
- Varelas, C., J.Biersack, Nucl.Instr. & Meth. 79, 213 (1970)
- Veen, A.van, L.M. Caspers: "Defect Analysis by Thermal Helium Desorption Spectrometry", Proc. 7th Int. Vac.Congr. and 3rd Int.Conf. Solid Surfaces (Wien), Eds: R.Dobrozemsky et al., 2637 (1977)
- Verbeek, H., W.Eckstein, Applications of Ion Beams to Metals, Plenum Press N.Y./London, 597 (1974)
- Webb, R.P., S.E.Donnelly, D.G.Armour, Vacuum 27/9 (1977)
- Weißmann, R., P.Sigmund, Rad.Eff. 18n 47 (1973)
- Welford, W.T., Contemp. Phys. 21/4, 401 (1980)
- Willertz, L.E., P.G.Shewmon, Metallurgical Trans.1, 2217 (1970)
- Wilson, K.L., L.G.Haggmark, R.A.Langley, Proc.Int. Symp. Plasma Wall Interaction, Jülich 401 (1976) a
- Wilson, K.L., G.J.Thomas, J.Nucl.Mat. 63, 266 (1976) b
- Wilson, W.D., R.H.Johnson "Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects", Eds. P.C.Gehler, J.R.Beeler, R.I.Jaffee), Plenum Press, N.Y. 375 (1972)
- Wilson, W.D., C.L.Bisson, Rad.Eff. 19, 52 (1973)
- Wilson, W.D., C.L.Bisson, Rad.Eff. 22, 63 (1974)
- Winterbon, K.B., "Ion Implantation Range and Energy Deposition Distribution", Vol. 2, IFI/Plenum Press, N.Y./Washington/London (1975)
- Wolfer, W.G., J.Nucl.Mat. 93&94, 713 (1980)
- Wycisk, W., M.Feller-Kniepmeier, J.Nucl.Mat. 69&70, 616 (1978)
- Yarnell, J.L., R.H.Looberg, W.R.Stratton, Phys.Rev.90, 292 (1953)
- Ziegler, J.F., "Helium Stopping Powers and Ranges in All Elements", Pergamon Press, N.Y./Toronto/Oxford/Sydney/Frankfurt/Paris (1977)

Herrn Professor Dr. Sizmann danke ich für sein Interesse an der Arbeit und seine Bereitschaft, diese zu betreuen.

Bei Herrn Dr. Behrisch und Herrn Dr. Scherzer bedanke ich mich für die Unterstützung während der Arbeit und die stete Bereitschaft, in hilfreichen Diskussionen zur Klärung von Problemen beizutragen.

Für seine Hilfe beim Aufbau der Meßapparatur möchte ich mich bei Herrn Wacker bedanken sowie bei Fr. Sombach, Fr. Stampfl und Fr. Hirschinger für die Anfertigung der Zeichnungen, und bei Fr. Daube für die Hilfe beim Schreiben der Arbeit.

Dank schulde ich auch allen anderen Mitgliedern der Gruppe PWW am IPP, insbesondere Herrn Dr. Eckstein, Herrn Dr. Möller, Herrn Schmiedl und Herrn Wiederer für die Hilfestellungen, die sie mir in den vergangenen drei Jahren entgegengebracht haben.

## LEBENS LAUF DES AUTORS

- 22.12.1951                      Geboren in Ellwangen/Württemberg  
Eltern: Karl Ehrenberg, Verwaltungsangestellter  
und Marianne Ehrenberg, geb. Dengler,  
Sozialarbeiterin
- 1959 - 1963                    Volksschule in Oberkochen, Ostalbkreis, Württ.
- 1963 - 1972                    Gymnasium Oberkochen
- 19.6.1972                      Reifeprüfung am Gymnasium Oberkochen
- Ab WS 1972/73                Studium der Physik an der Albert-Ludwigs-Uni-  
versität (ALU) in Freiburg i.Br.
- 22.7.1974                      Vordiplom in Physik an der ALU
- WS 1974/75                    Fortsetzung des Physikstudiums an der Ludwig-  
Maximilian-Universität (LMU) München
- Ab November 1976            Diplomarbeit am Lehrstuhl Prof.Dr.S.Skorka, LMU
- 13.9.1978                      Diplomhauptprüfung in Physik an der LMU
- 1.11.1978 - 31.10.1981      Stipendiat am Max-Planck-Institut für Plasmaphysik  
in Garching bei München und Anfertigung der Dok-  
torarbeit unter der Betreuung von Prof.Dr.R. Sizmann  
(LMU München)
- Seit Dezember 1981           Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Max-Planck-  
Institut für Plasmaphysik in Garching bei München





